

# ACTA PHYSICA

ACADEMIAE SCIENTIARUM  
HUNGARICAE

ADIUVANTIBUS

Z. GYULAI, L. JÁNOSSY, I. KOVÁCS, K. NOVOBÁTZKY

REDIGIT

P. GOMBÁS

TOMUS XII

FASCICULUS 1



1960

ACTA PHYS. HUNG.



**ACTA PHYSICA**  
**A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA**  
**FIZIKAI KÖZLEMÉNYEI**

SZERKESZTŐSÉG ÉS KIADÓHIVATAL: BUDAPEST V., ALKOTMÁNY U. 21.

Az *Acta Physica* német, angol, francia és orosz nyelven közöl értekezéseket a fizika tárgyköréből.

Az *Acta Physica* változó terjedelmű füzetekben jelenik meg: több füzet alkot egy kötetet. A közlésre szánt kéziratok a következő címre küldendők:

*Acta Physica, Budapest 62, Postafiók 440.*

Ugyanerre a címre küldendő minden szerkesztőségi és kiadóhivatali levelezés.

Az *Acta Physica* előfizetési ára kötetenként belföldre 80 forint, külföldre 110 forint. Megrendelhető a belföld számára az Akadémiai Kiadónál (Budapest V., Alkotmány utca 21. Bankszámla 05-915-111-46), a külföld számára pedig a „Kultúra” Könyv- és Hírlap Külkereskedelmi Vállalatnál (Budapest VI., Népköztársaság útja 21. Bankszámla 43-790-057-181 sz.), vagy annak külföldi képviselőinél és bizományosainál.

---

Die *Acta Physica* veröffentlichen Abhandlungen aus dem Bereiche der Physik in deutscher, englischer, französischer und russischer Sprache.

Die *Acta Physica* erscheinen in Heften wechselnden Umfanges. Mehrere Hefte bilden einen Band.

Die zur Veröffentlichung bestimmten Manuskripte sind an folgende Adresse zu richten:

*Acta Physica, Budapest 62, Postafiók 440.*

An die gleiche Anschrift ist auch jede für die Redaktion und den Verlag bestimmte Korrespondenz zu senden.

Abonnementspreis pro Band: 110 forint. Bestellbar bei dem Buch- und Zeitungs-Aussenhandels-Unternehmen »Kultura« (Budapest VI., Népköztársaság útja 21. Bankkonto Nr. 43-790-057-181) oder bei seinen Auslandsvertretungen und Kommissionären.

# ACTA PHYSICA

ACADEMIAE SCIENTIARUM  
HUNGARICAE

ADIUVANTIBUS

Z. GYULAI, L. JÁNOSSY, I. KOVÁCS, K. NOVOBÁTZKY

REDIGIT

P. GOMBÁS

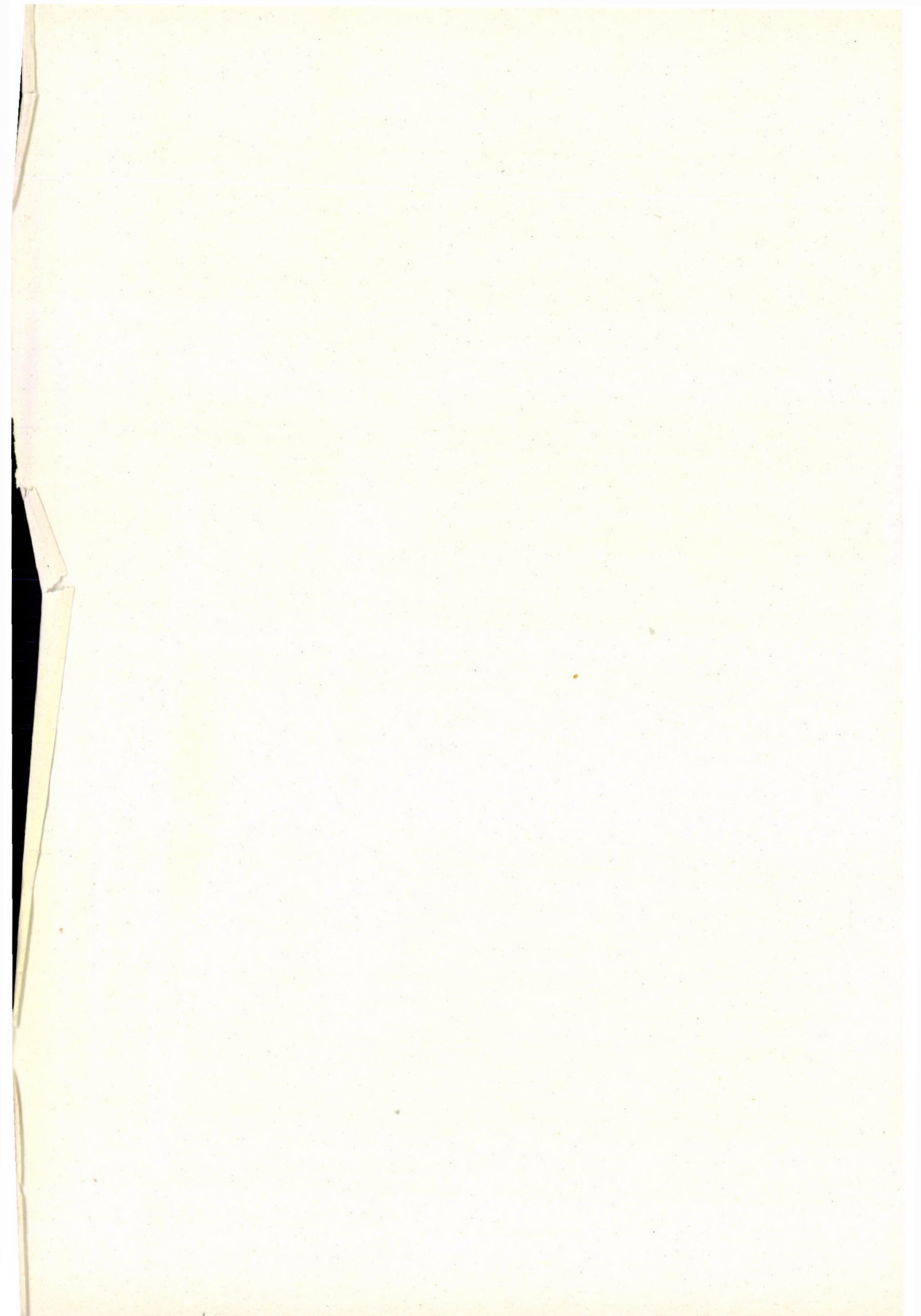
TOMUS XII



1960

ACTA PHYS. HUNG.







ACTA PHYSICA

TOMUS XII

<i>F. Berencz</i> : Die Rolle der Multipolwechselwirkungen bei den van der Waalsschen Attraktionen — <i>Ф. Беренц</i> : Роль мультипольного взаимодействия в вандерваальсовом притяжении .....	1
<i>F. J. Gilde and M. I. Bán</i> : Splittings of $d^n$ -Terms in Strong Fields of Trigonal and Rhombic Symmetries — <i>Ф. Й. Гилде и М. И. Бан</i> : Расщепление $d^n$ -уровней под влиянием сильных тригональных и ромбических комплексных полей .....	13
<i>C. B. Тябликов и Т. Шиклош</i> : Квантовая теория одноосно-анизотропных ферромагнетиков. — <i>S. V. Tiablikov and T. Siklós</i> : Quantum Theory of Uniaxial Anisotropic Ferromagnetic Crystals .....	35
<i>F. Berencz</i> : The Relation between Löwdin's Spin Projection Operator and Pratt's Spin Operator. — <i>Ф. Беренц</i> : Связь между спиновым проекционным оператором Лёвдина и спиновым оператором Пратта .....	47
<i>G. Pócsik</i> : Meson-Fermion PV-Interaction in the Thirring Modell II. — <i>Г. Почик</i> : PV-взаимодействие мезона и фермиона в модели Тирринга II. ....	55
<i>I. Kovács</i> : Investigation of the $A^3\Pi$ -State of the NH Molecule — <i>И. Ковач</i> : Исследование состояния $A^3\Pi$ молекулы NH. ....	67
<i>Margit Tóth-Bitskey and J. Pócza</i> : Investigations into the Elementary Processes Occurring in Electric Spark Machining .....	77
<i>T. Tietz</i> : Phase Shifts of High-Energy Dirac and Klein—Gordon Particles.....	85
<i>T. Szondy</i> : Eine einfache Annäherung der Elektronenwechselwirkungsintegrale der Quantenchemie .....	89
<i>П. Швист</i> : О центрах люминесценции бромистой меди .....	93
<i>G. Györgyi</i> : John M. Blatt, Victor F. Weisskopf, Theoretische Kernphysik (Buchbesprechung) .....	95
<i>I. Berkes and I. Demeter</i> : Small-Angle Coherent Scattering of 500 keV Electrons. — <i>И. Беркеш и И. Деметер</i> : Когерентное рассеяние 500 кэВ электронов под малыми углами .....	99
<i>F. Berencz</i> : Der Beitrag der Oktupolkräfte zu den van der Waalsschen Attraktionen — <i>Ф. Беренц</i> : Действие октупольных сил в притяжении ван дер Ваальса .....	103
<i>A. Ádám, L. Bod, Z. Szabó and L. Szeghó</i> : A Pulsed ( $d, t$ ) Neutron Source. — <i>А. Адам, Л. Бод, З. Сабо и Л. Сеге</i> : Импульсно-модулированный источник ( $d, t$ ) нейтронов .....	107
<i>I. Tamássy-Lentei</i> : Investigation of the Excited States of the $H_2$ -Molecule by Means of the United Atom Model. — <i>И. Тамаш-Лентей</i> : Исследование возбужденных состояний молекулы $H_2$ при помощи объединенной модели атома .....	119



<i>I. Náray-Szabó und J. Ladik</i> : Zusammenhang zwischen der Struktur und den physikalischen Eigenschaften des Glases IV. — <i>И. Нараи-Сабо и Й. Ладик</i> : Зависимость между структурой и физическими свойствами стекла IV. ....	131
<i>L. Jánossy</i> : On the Simultaneous Distribution of the Sagittas of a Track in Emulsion in the Case of Back Ground Noise. — <i>Л. Яноши</i> : Об одновременном распределении отклонений следов частиц в эмульсии при наличии фона .....	139
<i>T. Tietz</i> : Über den Mottscchen Polarisationseffekt bei der Streuung von Elektronen an Thomas-Fermischen und Hartreeschen Atomen. — <i>T. Титц</i> : О поляризационном эффекте Мотта при рассеянии электронов на атомах Томаса—Ферми и Хартри .....	151
<i>T. Tietz</i> : Über die Streuung der Elektronen am Latterschen Potential des Atoms, .....	163
<i>J. Gyulai</i> : On the Simultaneous Determination of Lifetime, Diffusivity and Surface Recombination Velocity of Injected Carriers in Semiconductors by the Flying Spot Method .....	167
<i>R. Gáspár</i> : Über die Elektronenstruktur des Schwefelatoms. ....	171
<i>G. Domokos</i> : On the Stability of a Solution of a Phenomenological Optical Model. ....	179
<i>G. Pócsik</i> : Schwinger's Equation for One-Body Propagator of a Selfcoupled Spinor Field	181
<i>E. Kapuy</i> : An Exact Derivation of Orthogonal Two-Electron Orbitals. ....	185
<i>T. Tietz</i> : Bremsspektrum bei Streuung nichtrelativistischer Elektronen an einem abgeschirmten Coulombfeld .....	189
<i>K. Nagy</i> : Angular Correlation between Neutrino and Gamma-Quantum in $K$ -Capture II. — <i>К. Надь</i> : Угловая корреляция нейтрино и гамма-кванта при $K$ -захвате	193
<i>K. Ladányi</i> : On the Bethe-Salpeter Method in the Thirring Model. — <i>К. Ладаны</i> : О методе Бете-Салпетера в модели Тирринга .....	199
<i>Л. Пал, Ф. Сабо, З. Дьимеши, Л. Бата и Л. Тури</i> : Исследования гетерогенной подкритической системы SR-1 — <i>L. Pál, F. Szabó, Z. Gyimesi, L. Bata and L. Turi</i> : Investigation of the SR-1 Heterogeneous Subcritical Assembly .....	205
<i>Gy. Gergely</i> : Diffusion Effects in Electron Bombardment Induced Processes I. Cathodoluminescence. — <i>Дь. Гергей</i> : Диффузионные явления при процессах возбужденных электронной бомбардировкой I. Катодолюминесценция .....	221
<i>Th. Neugebauer</i> : Über die Interferenz von Photonen. — <i>Т. Нейггебауэр</i> : Об интерференции между фотонами .....	241
<i>P. Vértés</i> : On the Neutral Decay Products of Muons. ....	249
<i>Gy. Gergely</i> : The Influence of Excitation Conditions on the Dead Voltage of Phosphors	253
<i>G. Marx and M. Elkishem</i> : Absorption of High Energy Neutrinos. ....	257
<i>I. Ketskeméty, J. Dombi and R. Horvai</i> : The Connection of the Absorption and Fluorescence Spectra of Solutions. ....	263
<i>L. Detre</i> : Künstliche Erdsatelliten. 2. Sonderband der Fortschritte der Physik (Buchbesprechung) .....	269
<i>A. Szalay</i> : O. R. Frisch, F. A. Paneth, F. Laves, P. Rosbaud: Beiträge zur Physik und Chemie des 20. Jahrhunderts (Buchbesprechung) .....	271
<i>É. Kisdi-Kozsó and L. Turi</i> : On a 2-MeV Microtron. — <i>Е. Кишди-Косо и Л. Тури</i> : О микротроне на 2 MeV .....	273
<i>Th. Neugebauer</i> : Über die Berechnung der Polarisationsenergie in Ionengittern. — <i>Т. Нейггебауэр</i> : Вычисление поляризационной энергии в решетках ионов ...	279



<i>T. Tietz</i> : Paramagnetic Susceptibility of Conduction Electrons Calculated by the Aid of Analytical Formulas for the Theory of the Formation of Electron Groups in the Periodic System of Elements. — <i>T. Тимы</i> : Определение парамагнитной восприимчивости электронов проводимости с помощи аналитических формул для случая теории образования электронных групп в периодической системе элементов .....	291
<i>G. Heber</i> : Lehmann—Källén-Theorem und Geometrie der Minkowski-Welt. — <i>Г. Гебер</i> : Теорема Лемана—Келлена и геометрия пространства Минковского .....	297
<i>T. Scharbert, D. Berényi and Gy. Máthé</i> : Further Gamma-Spectroscopic Inquiry into the Decay Scheme of Fe <sup>59</sup> . — <i>Т. Шарберт, Д. Берени и Г. Матэ</i> : Дальнейшие $\gamma$ -спектроскопические исследования схемы распада Fe <sup>59</sup> .....	305
<i>Дь. Патаки</i> : О временной зависимости необратимых процессов в газе Кнудсена. — <i>G. Pataki</i> : Time Dependence of Irreversible Processes in Knudsen Gas .....	311
<i>F. Károlyházy</i> : Über Phasenoperatoren in der Strahlungstheorie. — <i>Ф. Карольгази</i> : О фазовых операторах в теории излучения .....	321
<i>P. Gombás</i> : Zur Berechnung der Bildung von Elektronengruppen im periodischen System der Elemente — <i>П. Гомбаш</i> : Об определении образования электронных групп в периодической системе элементов .....	329
<i>J. Gordon and P. Szabó</i> : On the "Radius Effect" in Large BF <sub>3</sub> Counter Tubes .....	333
<i>R. Gáspár</i> : Zur Theorie der Elektronenstruktur des Au-Atoms.....	335
<i>E. Kapuy</i> : Configuration Interaction for Wave Functions Built Up From Orthogonal Two-Electron Orbitals .....	351
<i>S. L. Malurkar</i> : Probability of Unusual Elements in Very Big Solar Flares Connected with Cosmic Ray Bursts .....	359
<i>T. A. Hoffmann</i> : K. Mendelssohn: Cryophysics (Book Review).....	361





# DIE ROLLE DER MULTIPOLWECHSELWIRKUNGEN BEI DEN VAN DER WAALSschen ATTRAKTIONEN

Von

F. BERENCZ

INSTITUT FÜR THEORETISCHE PHYSIK DER UNIVERSITÄT, SZEGED

(Vorgelegt von A. Kónya. — Eingegangen: 20. XII. 1959)

Der Ausdruck für die Wechselwirkung zwischen zwei Molekülen wird so verallgemeinert dass die Dipol-, Quadrupol- und Oktupolwechselwirkungen gleichmässig berücksichtigt werden. Es wurde von MARGENAU festgestellt, dass die Dipol-Quadrupol- und Quadrupol-Quadrupol-Wechselwirkungen neben der Dipol-Dipol-Wechselwirkung bei der Untersuchung der Wechselwirkung zwischen nichtpolaren Molekülen eine wichtige Rolle spielen. In dieser Arbeit wird darauf hingewiesen, dass die Dipol-Oktupol-Energie grössenordnungsmässig der Quadrupol-Quadrupol-Energie gleich ist, und so muss man in Näherungsverfahren beide entweder berücksichtigen oder ausser Betracht lassen. Es wird weiterhin festgestellt, dass in dem Ausdruck für die Störungsenergie bei der Wechselwirkung zwischen zwei Wasserstoffatomen die Dipol-Quadrupol-Energie 53%, die Quadrupol-Quadrupol-Energie 13%, die Dipol-Oktupol-Energie 23% der Dipol-Dipol-Energie beträgt.

## Einleitung

Die intermolekularen Kräfte werden gewöhnlich in zwei Gruppen und zwar in die Gruppe der Kräfte mit grosser Wirkungsweite oder van der Waalsche Kräfte und in die Gruppe der Kräfte mit kleiner Wirkungsweite oder Valenzkräfte eingeteilt. Während der ersten Gruppe die Kräfte angehören, auf welche die mit der van der Waalsschen Gleichung beschriebenen Eigenschaften der realen Gase zurückzuführen sind — daher stammt die Benennung —, befinden sich in der zweiten Gruppe die Kräfte, welche beim Entstehen der wirklichen chemischen Bindung eine Rolle spielen. Die van der Waalsschen Kräfte sind im allgemeinen Kräfte mit schwächerer Wechselwirkung, die zwischen den Molekülen auch in grösserer Entfernung wirken. Die van der Waalsschen Kräfte können durch die Eigenschaften der separierten Moleküle beschrieben werden, die Valenzkräfte dagegen nicht, da im Falle grösserer Atom- und Molekülentfernungen die Elektronenumrichtung nicht vorkommt, die bei der chemischen Bindung eine wichtige Rolle spielt.

Bei der Besprechung der Kräfte mit grosser Wirkungsweite werden gewöhnlich vier Kategorien unterschieden: die Kategorien

der elektrostatischen Kräfte,  
der Induktionskräfte,  
der Dispersionskräfte und  
der Resonanzkräfte.



Die durch die Wechselwirkung der verschiedenen Multipolmomente zweier nichtpolarer Moleküle entstehenden Kräfte sind die elektrostatischen Kräfte. Die Wechselwirkung eines polaren mit einem nichtpolaren Molekül ergibt die Induktionskräfte. Die Existenz dieser Kräfte wurde von DEBYE [1] nachgewiesen und ihre Benennung beruht darauf, dass die permanenten und die induzierten Dipole eine gegenseitige Anziehung aufeinander ausüben. LONDON hat nachgewiesen, dass die zwischen zwei nichtpolaren Molekülen wirkenden Kräfte als Störung des Grundzustandes durch die höheren Elektronenzustände des Systems aufgefasst werden können. Die Kräfte wurden von LONDON [2] Dispersionskräfte genannt, da sie von denselben Faktoren abhängen wie die Dispersion des Lichtes im Gas, nämlich von der Stärke der Übergänge in alle angeregten Zustände. Es muss bemerkt werden, dass die LONDONSchen Dispersionskräfte in allen Molekülenzuständen existieren. Im allgemeinen werden sie aber durch die Valenzkräfte verdeckt. Sie können nur dann bemerkt werden, wenn die Valenzkräfte sehr schwach oder gleich Null sind, das heisst im allgemeinen bei grossem Kernabstand. Im Falle nichtgleicher Zustände treten zwischen gleichen Molekülen die Resonanzkräfte dann auf, wenn die die Zustände der Moleküle beschreibenden Quantenzahlen solche sind, dass die Auswahlregeln den freien Austausch eines Photons zwischen den Molekülen erwarten lassen. Die Natur der elektrostatischen Kräfte und der Induktionskräfte wird am besten verständlich, wenn die Wechselwirkung zwischen den permanenten bzw. induzierten Dipolmomenten der Atome oder Moleküle rein klassisch behandelt wird; demgegenüber haben die LONDONSchen Dispersionskräfte und die Induktionskräfte einen ausgesprochen quantenmechanischen Ursprung.

Die van der Waalsschen Kräfte haben eine grosse Bedeutung in der Physik. Mit diesen Kräften können die Kohäsions- und Adhäsionserscheinungen sowie die »Nebervalenzkräfte« erklärt werden; weiterhin wirken diese Kräfte mit, wenn bei Polymerisation von einigen Molekülen Makromoleküle aufgebaut werden, und diese Kräfte halten auch die van der Waalssche Kristalle zusammen.

In der weiteren Arbeit wollen wir uns mit den zwischen den nichtpolaren Molekülen wirkenden van der Waalsschen Kräften beschäftigen, welche infolge der bei den Quantenübergängen auftretenden Wechselwirkungen der Multipole auftreten. Wenn die Entfernung der Moleküle grössenordnungsmässig in der Nähe des gaskinetischen Halbmessers ist, müssen neben den Dipolwechselwirkungen auch die höheren Multipolwechselwirkungen berücksichtigt werden. Es wurde von MARGENAU [3] festgestellt, dass die Dipol-Quadrupol- und die Quadrupol-Quadrupol-Wechselwirkungen neben der Dipol-Dipol-Wechselwirkung bei der Untersuchung der Wechselwirkungen zwischen nichtpolaren Molekülen auch eine wichtige Rolle spielen. In dieser Arbeit wird darauf hingewiesen, dass die Dipol-Oktupol-Wechselwirkung neben den obigen Wechselwirkungen auch nicht unbeachtet bleiben darf.



### Wechselwirkung der Moleküle

Nach LONDON werden die zwischen den nichtpolaren Molekülen wirkenden anziehenden Kräfte als Störung des Grundzustandes durch die höheren Elektronenzuständen des Systems betrachtet. Zur Berechnung der Störungsenergie wird der Ausdruck der Wechselwirkung zwischen Molekülen benötigt. Es ist bekannt, dass die Auswahlregeln für die Dipolstrahlung bei einem Leuchtelektron die Gestalt

$$\Delta l = \pm 1, \quad \Delta m = 0, \pm 1,$$

für die Quadrupolstrahlung

$$\Delta l = 0, \pm 2, \quad \Delta m = 0, \pm 1, \pm 2$$

und für die Oktupolstrahlung

$$\Delta l = \pm 1, \pm 3, \quad \Delta m = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3$$

haben [4]. Bei Systemen mit mehreren Leuchtelektronen verändern sich dieselben folgenderweise. Bei Dipolstrahlung gilt die LAPORTESCHE Regel: Es können nur Kombinationen von geraden Termen mit ungeraden und von ungeraden mit geraden Termen auftreten. Bei der Quadrupolstrahlung lautet die Regel wie folgt: Erlaubte Übergänge sind die zwischen je zwei geraden oder je zwei ungeraden Termen. Bei der Oktupolstrahlung verlangt die Regel wieder Kombination von geraden mit ungeraden Termen. Da die Auswahlregeln für die Dipol-, Quadrupol- und Oktupolstrahlung bekannt sind, erscheint es zweckmässig, den Ausdruck der Wechselwirkung zwischen Molekülen so zu verallgemeinern, dass die Dipol-, Quadrupol- und Oktupolwechselwirkungen berücksichtigt werden.

Betrachten wir das System der punktförmigen Ladungen  $e_i$ , deren Lage durch die Radiusvektoren  $r_i = r_i(x_{1i}, x_{2i}, x_{3i})$  festgestellt werden. Das Potential dieser Ladungsverteilung ist im Punkte  $P(\mathfrak{R})$

$$\varphi = \sum_i \frac{e_i}{|\mathfrak{R} - r_i|}. \quad (1)$$

Wenn angenommen wird, dass für ein jedes  $r_i$  die Ungleichheit  $r_i < R$  gültig ist, kann man (1) in eine Taylorsche Reihe entwickeln und mit den Bezeichnungen

$$\begin{aligned} q &= \sum e_i, \\ D_k &= \sum e_i x_{ki}, & k &= 1, 2, 3, \\ K_{kl} &= \sum e_i x_{ki} x_{li}, & k, l &= 1, 2, 3, \\ O_{klm} &= \sum e_i x_{ki} x_{li} x_{mi}, & k, l, m &= 1, 2, 3 \end{aligned} \quad (2)$$

gelangt man für das Potential zu dem folgenden Ausdruck:

$$\varphi = \frac{q}{R} - \sum_k D_k \frac{\partial}{\partial X_k} \frac{1}{R} + \frac{1}{2!} \sum_{k,l} K_{kl} \frac{\partial^2}{\partial X_k \partial X_l} \frac{1}{R} - \frac{1}{3!} \sum_{k,l,m} O_{klm} \frac{\partial^3}{\partial X_k \partial X_l \partial X_m} \frac{1}{R} + \dots, \quad (3)$$

wobei  $D$  der wohlbekannte Vektor des Dipolmoments,  $Q$  der symmetrische Tensor zweiter Stufe des Quadrupolmoments und  $O$  der Tensor dritter Stufe des Oktupolmoments ist.

Um den die Wechselwirkung zwischen zwei Molekülen ausdrückenden Zusammenhang zu gewinnen, nehmen wir an der Stelle mit dem Potentialwert  $\varphi(\mathfrak{R})$  eine zweite Ladungsverteilung an, deren Ladungspunkte mit  $\varepsilon_j$  bezeichnet werden sollen und deren Lagen jetzt durch die Radiusvektoren  $\sigma_j = \sigma_j(\xi_{1j}, \xi_{2j}, \xi_{3j})$  gegeben seien, die von dem Punkte  $P(\mathfrak{R})$  aus gemessen werden sollen. Die Wechselwirkungsenergie der zwei Punktsysteme ist offenbar

$$V = \sum_j \varepsilon_j \varphi(\mathfrak{R} + \sigma_j). \quad (4)$$

Da der Ausdruck des Potentials in (4) bei beliebigen punktförmigen Ladungssystemen sehr kompliziert ist, werden wir uns ferner nur mit solchen Ladungssystemen beschäftigen, die neutral sind und bei welchen die positiven Ladungen in einem Punkt lokalisiert sind, von dem die Radiusvektoren gemessen werden. Wenn angenommen wird, dass für ein jedes  $\sigma_j$  die Ungleichheit  $\sigma_j < \mathfrak{R}$  gültig ist, kann man (4) in eine Taylorsche Reihe entwickeln, und wenn man die Bezeichnungen unter (2) auf die Ladungsverteilung  $\varepsilon_j$  bezieht, gelangt man zu dem folgenden Resultat:

$$V = q' \varphi(R) + \sum_k D'_k \frac{\partial \varphi(R)}{\partial X_k} + \frac{1}{2!} \sum_{k,l} K'_{kl} \frac{\partial^2 \varphi(R)}{\partial X_k \partial X_l} + \frac{1}{3!} \sum_{k,l,m} O'_{klm} \frac{\partial^3 \varphi(R)}{\partial X_k \partial X_l \partial X_m} + \dots \quad (5)$$

Substituieren wir die Gleichung (3) in die Gleichung (5). Auf Grund der im Anhang im einzelnen gegebenen Rechnungen und mit der Annahme, dass die Ladungssysteme neutral sind, erhält die Gleichung (5) die folgende Form:



$$\begin{aligned}
V = & \frac{1}{R^3} \sum_{i,j} e_i e_j (x_{1i} \xi_{1j} + x_{2i} \xi_{2j} - 2 x_{3i} \xi_{3j}) + \\
& + \frac{3}{2R^4} \sum_{i,j} e_i e_j [r_i^2 \xi_{3j} - x_{3i} s_j^2 + (2 x_{1i} \xi_{1j} + 2 x_{2i} \xi_{2j} - 3 x_{3i} \xi_{3j}) (x_{3i} - \xi_{3j})] + \\
& + \frac{3}{4R^5} \sum_{i,j} e_i e_j [r_i^2 s_j^2 - 5 r_i^2 \xi_{3j}^2 - 5 x_{3i}^2 s_j^2 - 15 x_{3i}^2 \xi_{3j}^2 - \\
& \quad - 2 (x_{1i} \xi_{1j} + x_{2i} \xi_{2j} - 4 x_{3i} \xi_{3j})^2] + \\
& + \frac{1}{2R^5} \sum_{i,j} e_i e_j [-3 (r_i^2 + s_j^2) (x_{1i} \xi_{1j} + x_{2i} \xi_{2j} - 4 x_{3i} \xi_{3j}) + \\
& \quad + 5 (3 x_{1i} \xi_{1j} + 3 x_{2i} \xi_{2j} - 4 x_{3i} \xi_{3j}) (x_{3i}^2 + \xi_{3j}^2)] + \quad (6) \\
& + \frac{5}{4R^6} \sum_{i,j} e_i e_j [3 (r_i^2 s_j^2 + 2 x_{1i}^2 \xi_{1j}^2 + 2 x_{2i}^2 \xi_{2j}^2 + 9 x_{3i}^2 \xi_{3j}^2 + \\
& + 4 x_{1i} x_{2i} \xi_{1j} \xi_{2j} - 10 x_{1i} x_{3i} \xi_{1j} \xi_{3j} - 10 x_{2i} x_{3i} \xi_{2j} \xi_{3j}) (x_{3i} - \xi_{3j}) + \\
& + 7 (r_i^2 \xi_{3j}^2 - x_{3i}^2 s_j^2) + 3 (r_i^2 \xi_{3j} - x_{3i} s_j^2) (2 x_{1i} \xi_{1j} + 2 x_{2i} \xi_{2j} - 5 x_{3i} \xi_{3j})] + \\
& + \frac{5}{4R^7} \sum_{i,j} e_i e_j [2 (x_{1i}^2 \xi_{1j}^2 + x_{2i}^2 \xi_{2j}^2 + x_{3i}^2 \xi_{3j}^2 - 9 r_i^2 s_j^2) (x_{1i} \xi_{1j} + x_{2i} \xi_{2j} + x_{3i} \xi_{3j}) + \\
& + (21 r_i^2 s_j^2 - 21 r_i^2 \xi_{3j}^2 - 21 x_{3i}^2 s_j^2 + 109 x_{3i}^2 \xi_{3j}^2 + 4 x_{1i} x_{2i} \xi_{1j} \xi_{2j}) \times \\
& \times (x_{1i} \xi_{1j} + x_{2i} \xi_{2j}) + 2 (21 r_j^2 \xi_{3j}^2 + 21 x_{3i}^2 s_j^2 - 42 x_{3i}^2 \xi_{3j}^2 - \\
& - 19 x_{1i}^2 \xi_{1j}^2 - 19 x_{2i}^2 \xi_{2j}^2 - 36 x_{1i} x_{2i} \xi_{1i} \xi_{2j}) x_{3i} \xi_{3j}] + \dots
\end{aligned}$$

In dem Energieausdruck (6) repräsentiert die erste Summe die Dipol-, die zweite die Dipol-Quadrupol-, die dritte die Quadrupol-, die vierte die Dipol-Oktupol-, die fünfte die Quadrupol-Oktupol- und die sechste die Oktupolenergie. Die Aufmerksamkeit soll hier nachdrücklich auf die vierte Summe gerichtet werden, dass heisst auf die die Dipol-Oktupol-Energie repräsentierende Summe, da der Multiplikator hier auch die fünfte Potenz des reziproken Wertes der intermolekularen Entfernung ist, wie bei der die Quadrupolenergie repräsentierenden Summe. Diese beiden Energien sind deshalb grössenordnungsmässig gleich, und so müssen bei Näherungsmethoden beide in Betracht gezogen, oder beide weggelassen werden.

### Die Rolle der höheren Multipolwechselwirkungen bei den van der Waalsschen Attraktionen

Die Rolle der höheren Multipolwechselwirkungen bei den van der Waalsschen Attraktionen wird bei der Wechselwirkung zweier Wasserstoffatome geprüft. Es wird angenommen, dass zwei Wasserstoffatome im Grundzustand



so weit von einander entfernt sind, dass im Verhältnis zur Masse der Wasserstoffatome der Kernabstand  $R$  beträchtlich gross sei. In diesem Falle muss angenommen werden, dass eines der Elektronen ausgesprochen am Kern  $a$ , das andere am Kern  $b$  lokalisiert ist und so die Eigenfunktion des Systems die folgende Form hat:

$$\Psi = \psi_a(1) \psi_b(2); \quad (7)$$

hier bezieht sich  $a$  und  $b$  auf die Kerne, 1 und 2 auf die Elektronen. Bei einem grossen Kernabstand überlappen sich  $\psi_a(1)$  und  $\psi_b(2)$  überhaupt nicht, weswegen man mit dem Begriff der Austauschenergie bei der Untersuchung der Wechselwirkung zwischen Wasserstoffatomen nicht ans Ziel gelangen kann.

Die Wechselwirkung zwischen zwei sich im Grundzustand befindlichen einander weit entfernten Wasserstoffatomen wird auf Grund der Störungsrechnung bestimmt. Es ist bekannt, dass die Störungsenergie in erster Näherung der mit den ungestörten Eigenfunktionen gebildete Mittelwert des Störungsoperators ist. Dieser ist offenbar gleich Null, da die Grundzustände im Falle der Wasserstoffatome kugelsymmetrisch sind. Um das Problem zu lösen, muss die Störungsenergie in zweiter Näherung bestimmt werden. Wenn die Eigenfunktion des Grundzustandes des aus zwei Wasserstoffatomen bestehenden Systems mit

$$\Psi_{00} = \psi_{a0}(1) \psi_{b0}(2)$$

bezeichnet wird und alle anderen Zustände des Systems mit

$$\Psi_{k_1 k_2} = \psi_{ak_1}(1) \psi_{bk_2}(2),$$

wo  $k_1$  und  $k_2$  die Zahlentripel  $n, l, m$  bedeuten, ergibt die Störungsrechnung in zweiter Näherung das folgende Resultat:

$$\Delta E = \sum_{k_1, k_2}' \frac{|V_{00, k_1 k_2}|^2}{2E_0 - E_{k_1} - E_{k_2}}, \quad (8)$$

wo über alle Zustände des Wasserstoffatoms mit Ausnahme des Grundzustandes summiert werden muss und

$$V_{00, k_1 k_2} = \int \psi_{a0}^*(1) \psi_{b0}^*(2) V \psi_{ak_1}(1) \psi_{bk_2}(2) d\tau_1 d\tau_2.$$

Da die bei den Matrixelementen vorkommenden Funktionen ein vollständiges System bilden, könnte man den in (8) vorkommenden Ausdruck der Störungs-

energie auf Grund des matrixalgebraischen Zusammenhanges

$$\sum_j (\psi_0^* | \alpha | \psi_j) (\psi_j^* | \beta | \psi_0) = (\psi_0^* | \alpha \beta | \psi_0)$$

auf eine ganz einfache Form bringen, wenn der Nenner nicht von  $k_1$  und  $k_2$  abhängen würde. Diese Abhängigkeit wurde nach MARGENAU durch folgende Überlegungen beseitigt. Wie bekannt ist im Falle eines Wasserstoffatoms

$$E_n = -\frac{e^2}{2 a_0} \frac{1}{n^2},$$

und so ist in (8) der Nenner

$$-\frac{e^2}{a_0} \left( 1 - \frac{1}{n^2} \right),$$

wo  $n$  die Hauptquantenzahl des Zustandes  $k$  bedeutet. Der Nenner ändert sich in der Summe von  $-\frac{3}{4} \frac{e^2}{a_0}$  bis  $-\frac{e^2}{a_0}$ . Um die in (8) stehende Summe berechnen zu können, wird angenommen, dass in jedem Glied der Nenner gleich  $-\frac{e^2}{a_0}$  ist. So ergibt sich, da  $V_{00,00}$  gleich Null ist, der folgende Näherungswert für die Störungsenergie in zweiter Näherung:

$$\begin{aligned} \Delta E_2 &= -\frac{1}{e^2/a_0} \sum_{k_1 k_2}' |V_{00, k_1 k_2}|^2 = \\ &= -\frac{1}{e^2/a_0} \sum_{k_1 k_2} \left\{ |V_{00, k_1 k_2}|^2 - |V_{00,00}|^2 \right\} = -\frac{1}{e^2/a_0} (V^2)_{00,00}. \end{aligned} \quad (9)$$

Die Störungsenergie in zweiter Näherung ist also mittels der Eigenfunktion des Grundzustandes bestimmbar. MARGENAU zog bei der Berechnung nur die ersten drei Glieder des in (6) stehenden Ausdruckes in Betracht, welche die Dipol-, die Dipol-Quadrupol- und die Quadrupol-Energie darstellen. Wir haben oben festgestellt, dass in (6) das vierte Glied grössenordnungsmässig gleich dem dritten Glied ist, und deshalb wurde das vierte Glied auch in die Berechnung von  $\Delta E$  einbezogen, sodass auf diese Weise die Dipol-Oktupol-Wechselwirkung bei der Prüfung der LONDONSchen Dispersions-



kräfte berücksichtigt wird. So nimmt (6) mit den obigen Bedingungen die folgende Form an:

$$\begin{aligned}
 V = & \frac{e^2}{R^3} \left( x_1 \xi_1 + x_2 \xi_2 - 2 x_3 \xi_3 \right) + \\
 & + \frac{3}{2} \frac{e^2}{R^4} \left[ r^2 \xi_3 - x_3 s^2 + (2 x_1 \xi_1 + 2 x_2 \xi_2 - 3 x_3 \xi_3) (x_3 - \xi_3) \right] + \\
 & + \frac{3}{4} \frac{e^2}{R^5} \left[ r^2 s^2 - 5 r^2 \xi_3^2 - 5 x_3^2 s^2 - 15 x_3^2 \xi_3^2 + 2 (x_1 \xi_1 + x_2 \xi_2 - \right. \\
 & \quad \left. - 4 x_3 \xi_3)^2 \right] + \\
 & + \frac{1}{2} \frac{e^2}{R^5} \left[ -3 (r^2 + s^2) (x_1 \xi_1 + x_2 \xi_2 - 4 x_3 \xi_3) + 5 (3 x_1 \xi_1 + 3 x_2 \xi_2 - \right. \\
 & \quad \left. - 4 x_3 \xi_3) (x_3^2 - \xi_3^2) \right] + \dots
 \end{aligned} \tag{10}$$

Setzen wir (10) in (9) ein. Im Ausdruck  $V^2$  brauchen gemäss Anhang 2 diejenigen Glieder nicht berücksichtigt zu werden, in denen die ungeraden Potenzen der Elektronenkoordinaten vorhanden sind, da die mit der Gewichtsfunktion  $\Psi_{00}$  gebildeten Integrale dieser Glieder gleich Null sind. Die mit der Gewichtsfunktion  $\Psi_{00}$  gebildeten Integrale der anderen Glieder werden im Anhang 3 zusammengefasst. Mit Rücksicht auf das oben Gesagte ergibt sich für die Störungsenergie in zweiter Näherung das folgende Resultat:

$$\begin{aligned}
 \Delta E_2 = & -\frac{2}{3} \frac{e^2 a_0}{R^6} \left[ (r^2)_{00}^2 + \frac{3}{R^2} (r^4)_{00} (r^2)_{00} + \frac{21}{5 R^4} (r^4)_{00}^2 + \right. \\
 & \left. + \frac{4}{R^4} (r^6)_{00} (r^2)_{00} + \dots \right].
 \end{aligned}$$

Im Falle eines Wasserstoffatoms ist:

$$(r^2)_{00} = 3 a_0^2, \quad (r^4)_{00} = 22,5 a_0^4 \quad \text{und} \quad (r^6)_{00} = 315 a_0^6.$$

Mit diesen Werten ergibt sich:

$$\Delta E_2 = -\frac{6 e^2 a_0^5}{R^6} \left[ 1 + \frac{22,5 a_0^2}{R^2} + \frac{236,25 a_0^4}{R^4} + \frac{420 a_0^4}{R^4} + \dots \right]$$

oder mit der Bezeichnung  $\varrho = \frac{R}{a_0}$ :

$$\Delta E = \frac{12 E_0}{\varrho^6} \left[ 1 + \frac{22,5}{\varrho^2} + \frac{236,25}{\varrho^4} + \frac{420}{\varrho^4} + \dots \right]. \quad (11)$$

Beziehen wir nun die Gleichung (11) auf das van der Waalssche Minimum, das im Falle zweier Wasserstoffatome um  $\varrho = 6,5$  liegt. Es ergibt sich dann, dass die Dipol-Quadrupol-Energie — in der Klammer das zweite Glied — 53%, die Quadrupol-Quadrupol-Energie — in der Klammer das dritte Glied — 13%, die Dipol-Oktupol-Energie — in der Klammer das vierte Glied — 23% der Dipol-Dipol-Energie ist. Diese Resultate beweisen auch, dass die Dipol-Oktupol-Wechselwirkung einen ebenso wesentlichen Beitrag zu den van der Waalsschen Kräften bilden wie die Quadrupol-Quadrupol-Wechselwirkung.

\* \* \*

Ich danke auch an dieser Stelle Herrn Dr. J. I. HORVÁTH für die Durchsicht des Manuskriptes und für seine wertvollen Ratschläge.

## Anhang

### 1.

Die Ableitungen von  $R$  wurden so berechnet, dass die Koordinatenachsen  $x_3$  und  $\xi_3$  nach dem Differenzieren entlang  $R$  gelegt wurden. Da  $R$  die Entfernung der an einer Stelle lokalisierten positiven Ladung der Ladungssysteme misst, kann man, wenn man die Ladungssysteme als Moleküle betrachtet, sagen, dass  $R$  der Kernabstand ist.

$$\frac{\partial^2}{\partial X_k \partial X_l} \left( \frac{1}{R} \right) = \begin{cases} \frac{2}{R^3}, & \text{wenn } k = l = 3, \\ \frac{1}{R^3}, & \text{wenn } k = l = 1, \\ 0 & \text{anderswo;} \end{cases}$$

$$\frac{\partial^3}{\partial X_k \partial X_l \partial X_m} \left( \frac{1}{R} \right) = \begin{cases} -\frac{6}{R^4}, & \text{wenn } k = l = m = 3, \\ \frac{3}{R^4}, & \text{wenn } k = l \neq 3, m = 3, \\ 0 & \text{anderswo;} \end{cases}$$



$$\frac{\partial^4}{\partial X_k \partial X_l \partial X_m \partial X_n} \left( \frac{1}{R} \right) = \left\{ \begin{array}{l} -\frac{24}{R^5}, \text{ wenn } k=l=m=n=3, \\ \frac{9}{R^5}, \text{ wenn } k=l=m=n=1 \text{ oder } 2, \\ -\frac{12}{R^5}, \text{ wenn } k=l \neq m=n=3, \\ \frac{3}{R^5}, \text{ wenn } k=l=1 \text{ und } m=n=2, \\ 0 \text{ anderswo;} \end{array} \right.$$

$$\frac{\partial^5}{\partial X_k \partial X_l \partial X_m \partial X_n \partial X_p} \left( \frac{1}{R} \right) = \left\{ \begin{array}{l} -\frac{120}{R^6}, \text{ wenn } k=l=m=n=p=3, \\ -\frac{45}{R^6}, \text{ wenn } k=l=m=n \neq 3, p=3, \\ \frac{60}{R^9}, \text{ wenn } k=l \neq m=n=p=3, \\ -\frac{15}{R^6}, \text{ wenn } k=l=1, m=n=2, p=3, \\ 0 \text{ anderswo;} \end{array} \right.$$

$$\frac{\partial^5}{\partial X_k \partial X_l \partial X_m \partial X_n \partial X_p \partial X_r} \left( \frac{1}{R} \right) = \left\{ \begin{array}{l} \frac{720}{R^7}, \text{ wenn } k=l=m=n=p=r=3, \\ -\frac{225}{R^7}, \text{ wenn } k=l=m=n=p=r=1 \text{ oder } 2, \\ -\frac{45}{R^7}, \text{ wenn } k=l=m=n \neq p=r \neq 3, \\ \frac{270}{R^7}, \text{ wenn } k=l=m=n \neq p=r=3, \\ -\frac{360}{R^7}, \text{ wenn } k=l \neq m=n=p=r=3, \\ \frac{90}{R^7}, \text{ wenn } k=l=1, m=n=2, p=r=3, \\ 0 \text{ anderswo.} \end{array} \right.$$

2.

Die Wasserstoffatomfunktionen haben die folgende Gestalt:

$$\psi_{nlm}(\mathbf{r}, l, \varphi) = R_{nl}(\mathbf{r}) \Theta_{lm}(\vartheta) \Phi_m(\varphi),$$

wo

$$R_{nl}(r) = - \left\{ \left( \frac{2}{n a_0} \right)^3 \frac{(n-l-1)!}{2n[(n+l)!]^3} \right\}^{1/2} e^{-\frac{r}{na_0}} \left( \frac{2r}{na_0} \right)^l L_{n+l}^{2l+1} \left( \frac{2r}{na_0} \right),$$

$$\Theta_{lm}(\vartheta) = \left[ \frac{2l+1}{2} \cdot \frac{(l-|m|)!}{(l+|m|)!} \right]^{1/2} P_l^m(\cos \vartheta),$$

$$\Phi_m^*(\varphi) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} e^{i m \varphi}$$

und so

$$x_{1,00} = \frac{1}{4\pi} \int_0^\infty r |R_{10}|^2 r^2 dr \int_0^\pi \sin^2 \vartheta d\vartheta \int_0^{2\pi} \cos \varphi d\varphi = 0,$$

$$x_{2,00} = \frac{1}{4\pi} \int_0^\infty r |R_{10}|^2 r^2 dr \int_0^\pi \sin^2 \vartheta d\vartheta \int_0^{2\pi} \sin \varphi d\varphi = 0,$$

$$x_{3,00} = \frac{1}{4\pi} \int_0^\infty r |R_{10}|^2 r^2 dr \int_0^\pi \cos \vartheta \sin \vartheta d\vartheta \int_0^{2\pi} d\varphi = 0.$$

3.

$$(x_i^2)_{00} = \frac{1}{3} (r^2)_{00}, (x_i^4)_{00} = \frac{1}{5} (r^4)_{00}, (x_i^6)_{00} = \frac{1}{7} (r^6)_{00}, \quad i = 1, 2, 3.$$

$$(x_i^2 x_k^2)_{00} = \frac{1}{15} (r^4)_{00}, (x_i^2 x_k^4)_{00} = \frac{1}{35} (r^6)_{00}, \quad i \neq k, \quad i, k = 1, 2, 3.$$

$$(r^2 x_i^2)_{00} = \frac{1}{3} (r^4)_{00}, (r^4 x_i^2)_{00} = \frac{1}{3} (r^6)_{00}.$$

## LITERATUR

1. P. DEBYE, Phys. Zeits., **21**, 178, 1920.
2. F. LONDON, Trans. Faraday Soc., **33**, 8, 1937.
3. H. MARGENAU, Rev. Mod. Phys., **11**, 1, 1939.
4. A. SOMMERFELD, Atombau und Spektrallinien II. Vieweg, Braunschweig, 1939. S. 728.
5. W. KAUFMANN, Quantum Chemistry, Academic Press Inc., New York, 1957. S. 652.
6. L. PAULING und E. B. WILSON, Introduction to Quantum Mechanics, Mc Graw-Hill Comp. Inc., New York and London, 1935. S. 132.



РОЛЬ МУЛЬТИПОЛЬНОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ В ВАН ДЕР ВААЛЬСОВОМ  
ПРИТЯЖЕНИИ

Ф. БЕРЕНЦ

## Резюме

Выражение для взаимодействия между двумя молекулами обобщается таким образом, что в нем одинаково принимаются во внимание дипольные, квадрупольные и октупольные взаимодействия. Маргенау установлено, что дипольно-квадрупольные и квадрупольно-квадрупольные взаимодействия наряду с дипольно-дипольным взаимодействием при исследовании взаимодействия между неполярными молекулами играют важную роль. Далее показывается, что дипольно-октупольная энергия по порядку величины согласуется с квадрупольно-квадрупольной энергией, и, таким образом, в приближенном методе или обе необходимо принимать во внимание, или следует обеими пренебречь. Далее установлено, что в выражении для энергии возмущения при взаимодействии между двумя атомами водорода дипольно-квадрупольная энергия составляет 53% от дипольно-дипольной энергии, квадрупольно-квадрупольная — 13%, а дипольно-октупольная — 23%.

# SPLITTINGS OF $d^n$ -TERMS IN STRONG COMPLEX FIELDS OF TRIGONAL AND RHOMBIC SYMMETRIES

By

F. J. GILDE

DEPARTMENT OF THEORETICAL PHYSICS, THE UNIVERSITY, SZEGED

and

M. I. BÁN

INSTITUTE FOR GENERAL AND PHYSICAL CHEMISTRY, THE UNIVERSITY, SZEGED

(Presented by A. Kónya. — Received 11. I. 1960)

The properties of complex compounds of transition metals can be substantially characterized by the  $d$ -electrons. In the present paper all the strong-field configurations arising through the influence of strong fields of trigonal and rhombic symmetries from  $d^n$  ( $n = 1, 2, \dots, 10$ ) configurations are given. Owing to the effect of strong fields these strong-field configurations split. The symmetries and the multiplicities of the splitting products have been determined by the group theory. To classify the splitting products a new method was developed which, because of its group-theoretical basis, is exact.

## § 1. Introduction

It is known that a mononuclear complex consists of a central ion surrounded by the coordination zone having a well-defined symmetry. The so-called strong field approximation is one of the methods suitable for the quantum-mechanical treatment of such compounds.

BETHE [1] has introduced the "crystal field method" for studying the term splittings of ions in crystals. At a later date it was proved that this method can be well applied to complex ions too. In order to carry out calculations in this way it is usual to start from the following model. A complex, as we mentioned above, can be divided into two parts, namely, into an ionic core and the outer electrons. In many cases the core is considered as a point charge. The coordination zone is a point charge or dipole system having a well-defined symmetry. In the case of such a model, on the one hand, the interactions of outer electrons of the central ion, on the other, the effect of the complex field on these electrons are to be taken into consideration. According to the relative size of these interactions one has to deal with the weak field or the strong field approximation. Whenever the influence of the complex field on the outer electrons is less than the interactions of these electrons with each other, there exists a weak field. In the case of strong fields the effect of the complex field is greater than the interactions of the electrons of the central ion.

ORGEL [2] applied the strong field approximation to the calculations of the spectra of transition metal complexes. Hereafter the theory for complexes having  $O_h$  symmetry was fully developed by TANABE and SUGANO [3] and



ORGE [4]. In the case of  $O_h$  symmetry JØRGENSEN [5] has given the splittings of  $d^n$ -levels. KISS [6] was one of the first to apply the results of the theory to the interpretation of the spectra of complexes. Through the application of the strong field theory to complexes of  $O_h$  symmetry many cases were considered to be of  $O_h$  symmetry when actually lower symmetries existed [7]. The recognition of this defect was the reason for the extension of the theory to the case of  $D_{4h}$  symmetry [8]. However, the symmetries of many complexes of great interest are even lower than tetragonal. Therefore, in the present paper, we deal with the cases of symmetries  $D_{3d}$  and  $D_{2h}$  which also play important roles.

## § 2. Procedure for classification of splitting products

In the case of strong fields the effect of the complex field is the greater, so that even the one-electron states are influenced by it. Thus, neglecting the electron-electron interactions the linearly independent  $d$  wave functions of the free gaseous ion do not give totally degenerate states. This means that, corresponding to the symmetry of the complex field, the degeneracy of the state of the free gaseous ion is removed. Let be  $\Gamma_d(G)$  ( $G = D_{3d}, D_{2h}$ ) the representation of the group  $G$  in the space of the five  $d$  functions. As stated above this  $\Gamma_d(G)$  is reducible and may be broken up to irreducible components as follows:

$$\begin{aligned}\Gamma_d(D_{3d}) &= A_{1g} + 2E_g, \\ \Gamma_d(D_{2h}) &= 2A_{1g} + B_{1g} + B_{2g} + B_{3g}.\end{aligned}\tag{1}$$

In consequence of the above breaking down the one-electron state is split into three ( $D_{3d}$ ) and five ( $D_{2h}$ ) states, respectively. The irreducible representations are denoted in the usual way (cf. e. g. [9]). The space of the irreducible representations is spanned by a certain linear combination of the original  $d$  functions. These linear combinations have been distinguished with small letters which correspond to the capitals marking the representations. In the breaking down (1) the representations  $E_g$  and  $A_{1g}$  occur twice, therefore to distinguish the corresponding bases these will be marked  $e_g, \varepsilon_g$  and  $a_{1g}, \alpha_{1g}$  respectively. If that is the case for the symmetry  $D_{3d}$  a  $d$ -electron can stay in one of the states  $a_{1g}, e_g$  and  $\varepsilon_g$  and for  $D_{2h}$  in the states  $a_{1g}, \alpha_{1g}, b_{1g}, b_{2g}$  and  $b_{3g}$ .

When considering the electron-electron interactions — according to the PAULI principle — two of the electrons can coexist in the states  $a, \alpha$  and  $b$  and four of the electrons in the states  $e$  and  $\varepsilon$ . Consequently, corresponding to this occupation principle the many-electron wave functions can be built up as products of one-electron functions. The possible products give the *strong-field configurations*.



The many-electron functions belonging to certain strong-field configurations generally span a space which is still reducible. It results from this reducibility that in consequence of the strong influence of the coordination zone the degeneracy of the many-electron functions may be lifted to a certain defined extent.

We shall now deal with the determination of the splittings which occur in this way. In order to calculate<sup>1</sup> the splittings mentioned the space of all the strong-field configurations has to be reduced. In the first place it can be stated that — since the basis  $d$ -functions contain the coordinates in even power, all the products formed from them and also the linear combinations of these give sub-levels of  $g$  type only. First, the dimension of the space formed by the strong-field configurations, i. e. the number ( $r$ ) of functions linearly independent of one another and belonging to the space, should be determined. As we stated earlier, in a state belonging to a representation of dimension  $j_i$   $2j_i$  electrons can stay. If the number of filled up states is  $k_i$  we obtain by means of simple combinatorial considerations

$$r = \prod_{i=1}^s r_i, \quad r_i = \binom{2j_i}{k_i}; \quad (2)$$

where  $s$  is the number of the kinds<sup>2</sup> of functions building up the strong-field configuration.

As a further step, the trace system of the representations attained in the space of the strong-field configurations is to be determined. These traces are the products of the traces of the representations obtained in the spaces being formed by the functions of the same kind. To calculate the traces belonging to the functions of the same kind one can go the following way. If the occupation number is 1, the traces in the space of the functions belonging to one-dimensional irreducible representations ( $A$  and  $B$ ) are double the corresponding characters<sup>3</sup> and they are equal to the character of the trivial representation of the group considered, if the occupation number is 2. In the case of multi-dimensional irreducible representation ( $E$ ), it is obvious, that the traces belonging to the functions of the kind  $e_g$ ,  $\varepsilon_g$ ,  $(e_g)^3$  and  $(\varepsilon_g)^3$  are equal. Further we have to deal in detail with two more difficult cases. (i) The dimension of the spaces  $(e_g)^2$  and the isomorphous  $(\varepsilon_g)^2$  — since in this case  $j = 2$  and  $k = 2$  — is  $r_{(e_g)^2} = r_{(\varepsilon_g)^2} = 6$ . In order to calculate the traces, the transformation properties

<sup>1</sup> For the classification of the splitting products BETHE already developed a procedure which has been also applied by the authors in a previous paper. The method further discussed — as it was mentioned in the work cited [8] — is more direct and more reasonable in theoretical respect than BETHE's.

<sup>2</sup> Functions belonging to the same kind are marked by the same letters, thus the functions  $a_1$  and  $\alpha_1$ , respectively, belong to different kinds, while  $e_{g1}$  and  $e_{g2}$  are of the same kind.

<sup>3</sup> The term "character" is usually applied to the traces of irreducible representations



of the functions  $(e_g)^2$  have to be determined. For this one has to take into consideration the transformation properties of the functions  $e_g$ . After antisymmetrizing these the transformation properties of the functions of type  $(e_g)^2$  can be obtained (see the Appendix). The traces required are given in Table I

Table I  
Character system of group  $D_3$

	E	$2C_3$	$3C_2$
$A_1$	1	1	1
$A_2$	1	1	-1
$E$	2	-1	0
$(e)^2$	6	3	-2
$(e\varepsilon)$	4	1	0

(last but one row). Accordingly, the corresponding splitting is of the form

$$\Gamma_{(e_g)^2} = A_{1g} + 3A_{2g} + E_g. \quad (3)$$

(ii) There exists also the configuration  $(e_g)(\varepsilon_g)$ . The space of this is of four dimensions and reducible. The trace system may be also determined by studying the transformation properties (see Appendix). The corresponding splitting is

$$\Gamma_{(e_g)(\varepsilon_g)} = A_{1g} + A_{2g} + E_g. \quad (4)$$

If the trace systems are known the classification of the splitting products of the strong-field configurations in conformity with the irreducible representations can be made. Our next task shall be the determination of the multiplicities of the sub-levels. Inasmuch as the splitting products of a strong-field configuration belong to only irreducible representations of one kind and knowing the  $r_i$  in question, the multiplicities can be counted. If splitting products present themselves in various kinds of irreducible representations, first the basis functions spanning the irreducible sub-spaces have to be determined. The basis functions  $\varphi_n^{(i)}$  ( $n = 1, 2, \dots, r_i$ ) of the space of dimension  $r_i$  formed by the antisymmetrized functions of  $i$ th kinds compose the system  $\varphi_i = \{\varphi_n^{(i)}\}$ . The space of strong-field configurations established by the functions of  $i$ th and  $j$ th kind is spanned by the direct product  $\varphi_i \otimes \varphi_j$ . Since the system  $\varphi_i$  is broken up — from the beginning — into irreducible components, the direct product

also breaks non-inevitably up into irreducible components. In such a way, a problem belonging to the configuration  $d^n$  is attributed to problems belonging to  $d^{n-1}$ . If these steps are successively applied all the reduction problems can be ascribed to reduction problems belonging to  $d^2$ . Here products of bases belonging to one-dimensional irreducible representations appear, which give the bases of the corresponding irreducible product representation. Moreover, we obtain products of bases of one- and two-dimensional representations, which yield the bases of the two-dimensional representations. Finally, products of bases belonging to two-dimensional representations present themselves. Merely the latter span reducible space. These occur in the forms  $e_g \cdot e_g$  and  $e_g \cdot \varepsilon_g$ , respectively, the bases of which spanning irreducible sub-spaces can be also determined<sup>4</sup> (cf. Appendix). If the bases of the irreducible sub-spaces are known — as when we have splitting products only of one kind — the multiplicities can be counted.

### § 3. Results

By means of the method given in the former paragraph the splitting products arising through the influence of strong complex fields of  $D_{3d}$  and  $D_{2h}$  symmetries from the electron configurations  $d^1 - d^{10}$  have been constructed. The results obtained are the same in configurations  $d^n$  and  $d^{10-n}$ . In the configurations  $d^1$  and  $d^9$  the splittings are corresponding to (1):

$$\begin{aligned}
 D_{3d} : & \quad {}^2A_{1g} + 2 {}^2E_g, \\
 D_{2h} : & \quad 2 {}^2A_{1g} + {}^2B_{1g} + {}^2B_{2g} + {}^2B_{3g}.
 \end{aligned}
 \tag{5}$$

The superscripts mean the spin multiplicities. In the case  $d^{10}$  a single term  ${}^1A_{1g}$  presents itself for both symmetries. The splitting products of the rest of the configurations are listed in Tables II—IX. In the first columns of these Tables one can find the possible strong-field configurations of a given electron configuration. In the second, the total sums of degeneracy numbers of each configuration are given. In the remaining columns the splitting products grouped according to multiplicities and irreducible representations are displayed. In the last columns the equivalent pairs in  $d^{10-n}$  corresponding to the strong-field configurations of  $d^n$  are shown.

<sup>4</sup> The basis functions thus obtained are antisymmetrized not for each electron, therefore these have to be antisymmetrized for the coordinates of electrons occurring in the functions of different kinds too.



**Table II**  
Splitting products of electron configurations  $d^2$  and  $d^8$  in  $D_{3d}$

$d^2$	Total degeneracy	${}^1A_{1g}$	${}^3A_{1g}$	${}^1A_{2g}$	${}^3A_{2g}$	${}^1E_g$	${}^3E_g$	$d^8$
$(a_{1g})^2$	1	1						$(e_g)^4(\varepsilon_g)^4$
$(e_g)^2$	6	1			1	1		$(a_{1g})^2(e_g)^2(\varepsilon_g)^4$
$(\varepsilon_g)^2$	6	1			1	1		$(a_{1g})^2(e_g)^4(\varepsilon_g)^2$
$(a_{1g})(e_g)$	8					1	1	$(a_{1g})(e_g)^3(\varepsilon_g)^4$
$(a_{1g})(\varepsilon_g)$	8					1	1	$(a_{1g})(e_g)^4(\varepsilon_g)^3$
$(e_g)(\varepsilon_g)$	16	1	1	1	1	1	1	$(a_{1g})^2(e_g)^3(\varepsilon_g)^3$

Table III

Splitting products of electron configurations  $d^3$  and  $d^7$  in  $D_{3d}$ 

$d^3$	Total degeneracy	${}^2A_{1g}$	${}^4A_{1g}$	${}^2A_{2g}$	${}^4A_{2g}$	${}^2E_g$	${}^4E_g$	$d^7$
$(e_g)^3$	4					1		$(a_{1g})^2(e_g)(\varepsilon_g)^4$
$(\varepsilon_g)^3$	4					1		$(a_{1g})^2(e_g)^4(\varepsilon_g)$
$(a_{1g})^2(e_g)$	4					1		$(e_g)^3(\varepsilon_g)^4$
$(a_{1g})^2(\varepsilon_g)$	4					1		$(e_g)^4(\varepsilon_g)^3$
$(e_g)^2(a_{1g})$	12	1		1	1	1		$(a_{1g})(e_g)^2(\varepsilon_g)^4$
$(\varepsilon_g)^2(a_{1g})$	12	1		1	1	1		$(a_{1g})(e_g)^4(\varepsilon_g)^2$
$(e_g)^2(\varepsilon_g)$	24	1		1		3	1	$(a_{1g})^2(e_g)^2(\varepsilon_g)^3$
$(\varepsilon_g)^2(e_g)$	24	1		1		3	1	$(a_{1g})^2(e_g)^3(\varepsilon_g)^2$
$(a_{1g})(e_g)(\varepsilon_g)$	32	2	1	2	1	2	1	$(a_{1g})(e_g)^3(\varepsilon_g)^3$



**Table IV**  
Splitting products of electron configurations  $d^4$  and  $d^6$  in  $D_{3d}$

$d^4$	Total degeneracy	$^1A_{1g}$	$^3A_{1g}$	$^5A_{1g}$	$^1A_{2g}$	$^3A_{2g}$	$^5A_{2g}$	$^1E_g$	$^3E_g$	$^5E_g$	$d^6$
$(e_g)^4$	1	1									$(a_{1g})^2(\varepsilon_g)^4$
$(\varepsilon_g)^4$	1	1									$(a_{1g})^2(e_g)^4$
$(e_g)^2(a_{1g})^2$	6	1				1		1			$(e_g)^2(\varepsilon_g)^4$
$(\varepsilon_g)^2(a_{1g})^2$	6	1				1		1			$(e_g)^4(\varepsilon_g)^2$
$(e_g)^3(a_{1g})$	8							1	1		$(a_{1g})(e_g)(\varepsilon_g)^4$
$(\varepsilon_g)^3(a_{1g})$	8							1	1		$(a_{1g})(e_g)^4(\varepsilon_g)$
$(e_g)^3(\varepsilon_g)$	16	1	1		1	1		1	1		$(a_{1g})^2(e_g)(\varepsilon_g)^3$
$(\varepsilon_g)^3(e_g)$	16	1	1		1	1		1	1		$(a_{1g})^2(e_g)^3(\varepsilon_g)$
$(a_{1g})^2(e_g)(\varepsilon_g)$	16	1	1		1	1		1	1		$(e_g)^3(\varepsilon_g)^3$
$(e_g)^2(\varepsilon_g)^2$	36	3	1	1	1	2		3	2		$(a_{1g})^2(e_g)^2(\varepsilon_g)^2$
$(e_g)(a_{1g})(\varepsilon_g)$	48	1	1		1	1		3	4	1	$(a_{1g})(e_g)^2(\varepsilon_g)^3$
$(\varepsilon_g)^2(a_{1g})(e_g)$	48	1	1		1	1		3	4	1	$(a_{1g})(e_g)^3(\varepsilon_g)^2$

**Table V**  
Splitting products of electron configuration  $d^5$  in  $D_{3d}$

$d^5$	Total degeneracy	${}^2A_{1g}$	${}^4A_{1g}$	${}^6A_{1g}$	${}^2A_{2g}$	${}^4A_{2g}$	${}^6A_{2g}$	${}^2E_g$	${}^4E_g$	${}^6E_g$
$(e_g)^4(a_{1g})$	2	1								
$(\varepsilon_g)^4(a_{1g})$	2	1								
$(e_g)^4(\varepsilon_g)$	4							1		
$(\varepsilon_g)^4(e_g)$	4							1		
$(e_g)^3(a_{1g})^2$	4							1		
$(\varepsilon_g)^3(a_{1g})^2$	4							1		
$(e_g)^3(\varepsilon_g)^2$	24	1			1			3	1	
$(\varepsilon_g)^3(e_g)^2$	24	1			1			3	1	
$(e_g)^2(a_{1g})^2(\varepsilon_g)$	24	1			1			3	1	
$(\varepsilon_g)^2(a_{1g})^2(e_g)$	24	1			1			3	1	
$(e_g)^3(a_{1g})(\varepsilon_g)$	32	2	1		2	1		2	1	
$(\varepsilon_g)^3(a_{1g})(e_g)$	32	2	1		2	1		2	1	
$(e_g)^2(\varepsilon_g)^2(a_{1g})$	72	4	2	1	3	2		5	2	

To make a successful comparison, in Table X we compiled the numbers of the splitting products grouped according to the electron configurations and to the symmetries considered. It is obvious that in case  $D_{3d}$  the size of the splitting is less than in case  $D_{4h}$ , though the latter group contains more symmetry elements than the former. In the case of the symmetry  $D_{2h}$  the splitting is complete.

It is evident that the above results should agree with the results of the direct breaking up of the RUSSEL—SAUNDERS terms. The comparison with these was used to check our results.

In the interests of practical use the following is worth noting. Since for symmetry  $D_{3d}$  only  $g$  terms occur the splittings in  $D_3$  and in  $C_{3v}$  (because it is isomorphous with  $D_3$ ) are attained by omitting the suffix  $g$ . In the same way, corresponding to the splittings in  $D_{2h}$  one can obtain the splittings in  $D_2$ . After substituting  $A_1, B_1, B_2$  and  $B_3$  in the group  $D_2$  by  $A_1, A_2, B_1$  and  $B_2$  we get the splittings in  $C_{2v}$ .



**Table VI**  
Splitting products of electron configurations  $d^2$  and  $d^8$  in  $D_{2h}$

$d^2$	Total degeneracy	$^1A_{1g}$	$^3A_{1g}$	$^1B_{1g}$	$^3B_{1g}$	$^1B_{2g}$	$^3B_{2g}$	$^1B_{3g}$	$^3B_{3g}$	$d^8$
$(a_{1g})^2$	1	1								$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})(b_{1g})$	1	1								$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(b_{1g})^2$	1	1								$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(b_{2g})^2$	1	1								$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{3g})^2$
$(b_{3g})^2$	1	1								$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})^2$
$(a_{1g})(a_{1g})$	4	1	1							$(a_{1g})(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})(b_{1g})$	4			1	1					$(a_{1g})(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})(b_{2g})$	4					1	1			$(a_{1g})(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})^2$
$(a_{1g})(b_{3g})$	4							1	1	$(a_{1g})(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})$
$(a_{1g})(b_{1g})$	4			1	1					$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})(b_{2g})$	4					1	1			$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})^2$
$(a_{1g})(b_{3g})$	4							1	1	$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})$
$(b_{1g})(b_{2g})$	4							1	1	$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})(b_{3g})^2$
$(b_{1g})(b_{3g})$	4					1	1			$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})^2(b_{3g})$
$(b_{2g})(b_{3g})$	4			1	1					$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})$

Since the above considerations do not rely on the concrete form of the system of functions used in a given approximation and only group-theoretical considerations are used our results can be considered to be quite exact.

For the quantum-mechanical interpretation of "ionic" complexes — in so far as those are normally paramagnetic — it is sufficient to apply the more simple weak-field approximation. Nevertheless, a considerable part of electrovalent complexes is anomalously paramagnetic. Then the strong-field method — which can be regarded as a higher approximation — is applicable and can be expected to lead to success. Another class of the complex compounds is formed by the "covalent" complexes. These are generally diamagnetic. In the statement of STEVENS [10] the strong-field model is formally equivalent to the covalent model. To this we can add, that it is acceptable at least if the ligands are slightly polarizable. In any case it is obvious that the strong-field model and with it the above results can be applied to numerous complexes.

### Appendix

Since in our calculations only the  $g$  representations of the group  $D_{3d}$  appear, it is enough to show our considerations for the case  $D_3$ .

The one-dimensional irreducible representations of the group  $D_3$  are equal to the corresponding characters (see Table I). One of the representations  $E$  is:

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{C}_3^{(1)} = \begin{pmatrix} -1/2 & \sqrt{3}/2 \\ -\sqrt{3}/2 & -1/2 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{C}_3^{(2)} = \begin{pmatrix} -1/2 & -\sqrt{3}/2 \\ \sqrt{3}/2 & -1/2 \end{pmatrix}, \\ \mathbf{C}_2^{(1)} &= \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{C}_2^{(2)} = \begin{pmatrix} 1/2 & -\sqrt{3}/2 \\ -\sqrt{3}/2 & -1/2 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{C}_2^{(3)} = \begin{pmatrix} 1/2 & \sqrt{3}/2 \\ \sqrt{3}/2 & -1/2 \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (6)$$

The antisymmetrized functions belonging to the strong-field configuration  $(e)^2$  are as follows:

$$\begin{aligned} f_1 &= 1/\sqrt{2} (e^+(1)_1 e^-(2)_1 - e^+(2)_1 e^-(1)_1), \\ f_2 &= 1/\sqrt{2} (e^+(1)_1 e^+(2)_2 - e^+(2)_1 e^+(1)_2), \\ f_3 &= 1/\sqrt{2} (e^+(1)_1 e^-(2)_2 - e^+(2)_1 e^-(1)_2), \\ f_4 &= 1/\sqrt{2} (e^-(1)_1 e^+(2)_2 - e^-(2)_1 e^+(1)_2), \\ f_5 &= 1/\sqrt{2} (e^-(1)_1 e^-(2)_2 - e^-(2)_1 e^-(1)_2), \\ f_6 &= 1/\sqrt{2} (e^+(1)_2 e^-(2)_2 - e^+(2)_2 e^-(1)_2). \end{aligned} \quad (7)$$



Table VII

Splitting products of electron configurations  $d^3$  and  $d^7$  in  $D_{2h}$ 

$d^3$	Total degeneracy	${}^2A_{1g}$	${}^4A_{1g}$	${}^2B_{1g}$	${}^4B_{1g}$	${}^2B_{2g}$	${}^4B_{2g}$	${}^2B_{3g}$	${}^4B_{3g}$	$d^7$
$(a_{1g})^2(a_{1g})$	2	1								$(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(b_{1g})$	2		1							$(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(b_{2g})$	2					1				$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(b_{3g})$	2							1		$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})$
$(a_{1g})^2(a_{1g})$	2	1								$(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(b_{1g})$	2		1							$(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(b_{2g})$	2					1				$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(b_{3g})$	2							1		$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})$
$(b_{1g})^2(a_{1g})$	2	1								$(a_{1g})(a_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(b_{1g})^2(a_{1g})$	2	1								$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(b_{1g})^2(b_{2g})$	2					1				$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})^2$
$(b_{1g})^2(b_{3g})$	2							1		$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})$
$(b_{2g})^2(a_{1g})$	2	1								$(a_{1g})(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{3g})^2$
$(b_{2g})^2(a_{1g})$	2	1								$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{3g})^2$
$(b_{2g})^2(b_{1g})$	2		1							$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{3g})^2$

$(b_{2g})^2(b_{3g})$	2		1	$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{3g})$
$(b_{3g})^2(a_{1g})$	2	1		$(a_{1g}) (a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})^2$
$(b_{3g})^2(a_{1g})$	2	1		$(a_{1g})^2(a_{1g}) (b_{1g})^2(b_{2g})^2$
$(b_{3g})^2(b_{1g})$	2		1	$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g}) (b_{2g})^2$
$(b_{3g})^2(b_{2g})$	2		1	$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})$
$(a_{1g}) (a_{1g}) (b_{1g})$	8	2	1	$(a_{1g}) (a_{1g}) (b_{1g}) (b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g}) (a_{1g}) (b_{2g})$	8		2 1	$(a_{1g}) (a_{1g}) (b_{1g})^2(b_{2g}) (b_{3g})^2$
$(a_{1g}) (a_{1g}) (b_{3g})$	8		2 1	$(a_{1g}) (a_{1g}) (b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})$
$(a_{1g}) (b_{1g}) (b_{2g})$	8		2 1	$(a_{1g}) (a_{1g})^2(b_{1g}) (b_{2g}) (b_{3g})^2$
$(a_{1g}) (b_{1g}) (b_{3g})$	8		2 1	$(a_{1g}) (a_{1g})^2(b_{1g}) (b_{2g})^2(b_{3g})$
$(a_{1g}) (b_{2g}) (b_{3g})$	8	2	1	$(a_{1g}) (a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g}) (b_{3g})$
$(a_{1g}) (b_{1g}) (b_{2g})$	8		2 1	$(a_{1g})^2(a_{1g}) (b_{1g}) (b_{2g}) (b_{3g})^2$
$(a_{1g}) (b_{1g}) (b_{3g})$	8		2 1	$(a_{1g})^2(a_{1g}) (b_{1g}) (b_{2g})^2(b_{3g})$
$(a_{1g}) (b_{2g}) (b_{3g})$	8	2	1	$(a_{1g})^2(a_{1g}) (b_{1g})^2(b_{2g}) (b_{3g})$
$(b_{1g}) (b_{2g}) (b_{3g})$	8	2	1	$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g}) (b_{2g}) (b_{3g})$



Table VIII  
Splitting products of electron configurations  $d^4$  and  $d^6$  in  $D_{2h}$

$d^4$	Total degeneracy	$^1A_{1g}$	$^3A_{1g}$	$^5A_{1g}$	$^1B_{1g}$	$^3B_{1g}$	$^5B_{1g}$	$^1B_{2g}$	$^3B_{2g}$	$^5B_{2g}$	$^1B_{3g}$	$^3B_{3g}$	$^5B_{3g}$	$d^6$
$(a_{1g})^2(a_{1g})^2$	1	1												$(b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(b_{1g})^2$	1	1												$(a_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(b_{2g})^2$	1	1												$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(b_{3g})^2$	1	1												$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})^2$
$(a_{1g})^2(b_{1g})^2$	1	1												$(a_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(b_{2g})^2$	1	1												$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(b_{3g})^2$	1	1												$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})^2$
$(b_{1g})^2(b_{2g})^2$	1	1												$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{3g})^2$
$(b_{1g})^2(b_{3g})^2$	1	1												$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{2g})^2$
$(b_{2g})^2(b_{3g})^2$	1	1												$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g})^2$
$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})$	4				1	1								$(a_{1g})(b_{1g})(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{2g})$	4							1	1					$(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{3g})$	4										1	1		$(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})$
$(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})$	4										1	1		$(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{3g})$	4							1	1					$(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})^2(b_{3g})$
$(a_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})$	4				1	1								$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})$
$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})$	4				1	1								$(a_{1g})(b_{1g})(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{2g})$	4							1	1					$(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})^2$
$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{3g})$	4										1	1		$(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})$
$(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})$	4										1	1		$(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})(b_{3g})^2$

$(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{3g})$	4		1	1		$(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})^2(b_{3g})$
$(a_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})$	4		1	1		$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})$
$(b_{1g})^2(a_{1g})(a_{1g})$	4	1	1			$(a_{1g})(a_{1g})(b_{2g})^2(b_{3g})^2$
$(b_{1g})^2(a_{1g})(b_{2g})$	4		1	1		$(a_{1g})(a_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})^3$
$(b_{1g})^2(a_{1g})(b_{3g})$	4				1 1	$(a_{1g})(a_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})$
$(b_{1g})^2(a_{1g})(b_{2g})$	4		1	1		$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{2g})(b_{3g})^2$
$(b_{1g})^2(a_{1g})(b_{3g})$	4				1 1	$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{2g})^2(b_{3g})$
$(b_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})$	4		1	1		$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})$
$(b_{2g})^2(a_{1g})(a_{1g})$	4	1	1			$(a_{1g})(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{3g})^2$
$(b_{2g})^2(a_{1g})(b_{1g})$	4		1	1		$(a_{1g})(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{3g})^2$
$(b_{2g})^2(a_{1g})(b_{3g})$	4				1 1	$(a_{1g})(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{3g})$
$(b_{2g})^2(a_{1g})(b_{1g})$	4		1	1		$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})(b_{3g})^2$
$(b_{2g})^2(a_{1g})(b_{3g})$	4				1 1	$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{3g})$
$(b_{2g})^2(b_{1g})(b_{3g})$	4				1 1	$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{3g})$
$(b_{3g})^2(a_{1g})(a_{1g})$	4	1	1			$(a_{1g})(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{2g})^2$
$(b_{3g})^2(a_{1g})(b_{1g})$	4		1	1		$(a_{1g})(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})^2$
$(b_{3g})^2(a_{1g})(b_{2g})$	4				1 1	$(a_{1g})(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})$
$(b_{3g})^2(a_{1g})(b_{1g})$	4		1	1		$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})(b_{2g})^2$
$(b_{3g})^2(a_{1g})(b_{2g})$	4				1 1	$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{1g})$
$(a_{1g})(a_{1g})(b_{1g})(b_{2g})$	16				1 1	$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})$
$(a_{1g})(a_{1g})(b_{1g})(b_{3g})$	16				2 3 1	$(a_{1g})(a_{1g})(b_{1g})(b_{2g})(b_{3g})^2$
$(a_{1g})(a_{1g})(b_{2g})(b_{3g})$	16		2 3 1			$(a_{1g})(a_{1g})(b_{1g})^2(b_{2g})(b_{3g})$
$(a_{1g})(b_{1g})(b_{2g})(b_{3g})$	16	2 3 1				$(a_{1g})(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})(b_{3g})$
$(a_{1g})(b_{1g})(b_{2g})(b_{3g})$	16	2 3 1				$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})(b_{2g})(b_{3g})$



Table IX\*

Splitting products of electron configuration  $d^5$  in  $D_{2h}$ 

$d^5$	Total degeneracy	${}^2A_{1g}$	${}^4A_{1g}$	${}^6A_{1g}$	${}^2B_{1g}$	${}^4B_{1g}$	${}^6B_{1g}$	${}^2B_{2g}$	${}^4B_{2g}$	${}^6B_{2g}$	${}^2B_{3g}$	${}^4B_{3g}$	${}^6B_{3g}$
$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{1g})$ , $(b_{2g})^2(b_{3g})^2(b_{1g})$	2				1								
$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{2g})$ , $(b_{1g})^2(b_{3g})^2(b_{2g})$	2							1					
$(a_{1g})^2(a_{1g})^2(b_{3g})$ , $(b_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})$	2										1		
$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(a_{1g})$ , $(b_{2g})^2(b_{3g})^2(a_{1g})$	2	1											
$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})$ , $(a_{1g})^2(b_{3g})^2(b_{2g})$	2							1					
$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{3g})$ , $(a_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})$	2										1		
$(a_{1g})^2(b_{2g})^2(a_{1g})$ , $(b_{1g})^2(b_{3g})^2(a_{1g})$	2	1											
$(a_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{1g})$ , $(a_{1g})^2(b_{3g})^2(b_{1g})$	2											1	
$(a_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{3g})$ , $(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{3g})$	2												1
$(a_{1g})^2(b_{3g})^2(a_{1g})$ , $(b_{1g})^2(b_{2g})^2(a_{1g})$	2	1											
$(a_{1g})^2(b_{3g})^2(b_{1g})$ , $(a_{1g})^2(b_{2g})^2(b_{1g})$	2											1	
$(a_{1g})^2(b_{3g})^2(b_{2g})$ , $(a_{1g})^2(b_{1g})^2(b_{2g})$	2												1

$(a_{1g})^2(b_{1g})^2(a_{1g}),$	$(b_{2g})^2(b_{3g})^2(a_{1g})$	2	1	
$(a_{1g})^2(b_{2g})^2(a_{1g}),$	$(b_{1g})^2(b_{3g})^2(a_{1g})$	2	1	
$(a_{1g})^2(b_{3g})^2(a_{1g}),$	$(b_{1g})^2(b_{2g})^2(a_{1g})$	2	1	
$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})(b_{2g}),$	$(b_{3g})^2(a_{1g})(b_{1g})(b_{2g})$	8		2 1
$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})(b_{3g}),$	$(b_{2g})^2(a_{1g})(b_{1g})(b_{3g})$	8		2 1
$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{2g})(b_{3g}),$	$(b_{1g})^2(a_{1g})(b_{2g})(b_{3g})$	8	2 1	
$(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})(b_{3g}),$	$(a_{1g})^2(b_{1g})(b_{2g})(b_{3g})$	8	2 1	
$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g}), (b_{2g}),$	$(b_{3g})^2(a_{1g})(b_{1g})(b_{2g})$	8		2 1
$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{1g})(b_{3g}),$	$(b_{2g})^2(a_{1g})(b_{1g})(b_{3g})$	8		2 1
$(a_{1g})^2(a_{1g})(b_{2g})(b_{3g}),$	$(b_{1g})^2(a_{1g})(b_{2g})(b_{3g})$	8	2 1	
$(b_{1g})^2(a_{1g})(a_{1g})(b_{2g}),$	$(b_{3g})^2(a_{1g})(a_{1g})(b_{2g})$	8		2 1
$(b_{1g})^2(a_{1g})(a_{1g})(b_{3g}),$	$(b_{2g})^2(a_{1g})(a_{1g})(b_{3g})$	8		2 1
$(b_{2g})^2(a_{1g})(a_{1g})(b_{1g}),$	$(b_{3g})^2(a_{1g})(a_{1g})(b_{1g})$	8	2 1	
$(a_{1g})(a_{1g})(b_{1g})(b_{2g})(b_{3g})$		32	5 4 1	

\* The number of the splitting products occurs only once in the rows containing two strong-field configurations.



**Table X**  
Number of splitting products

Configur ion	Without multiplet splitting					With multiplet splitting					Complete splitting
	Free atom	$O_h^*$	$D_{3d}$	$D_{4h}^{**}$	$D_{2h}$	Free atom	$O_h^*$	$D_{3d}$	$D_{4h}^{**}$	$D_{2h}$	
$d^1, d^9$	1	2	3	4	5	2	4	6	8	10	10
$d^2, d^8$	5	11	17	19	25	9	19	31	33	45	45
$d^3, d^7$	8	20	33	37	50	20	48	80	88	120	120
$d^4, d^6$	16	43	67	76	100	34	87	139	158	210	210
$d^5$	16	43	67	76	100	44	110	170	192	252	252

\* The results of JØRGENSEN [5]

\*\* Our previous results

Here  $e^{(i)}_j$  mean the wave functions of the  $i$ th electron of spin  $+1/2$  belonging to the  $j$ th row of the representation  $E$ . Since  $e^{(\cdot)}_j$  belongs to the  $j$ th row of the representation the function  $\mathbf{R}e^{(\cdot)}_j$  can be given by the matrix system (6), where  $\mathbf{R}$  is one of the matrices (6). The functions  $\mathbf{R}f_k$  are listed in Table XI. The trace system of the representation  $\Gamma_{(e)^2}$  can be easily read from this Table (cf. Table I last but one row). (3) can be obtained by the help of this trace system and by the expression

$$a_i = \frac{1}{h} \sum_{\mathbf{R} \in G} \chi_i(\mathbf{R}) \chi(\mathbf{R}). \quad (8)$$

Here  $h$  is the order of the group  $G$ ,  $\chi(\mathbf{R})$  is the trace of the operation  $\mathbf{R}$ ,  $\chi_i(\mathbf{R})$  is the character of the  $i$ th irreducible representation, and  $a_i$  is the number of times the  $i$ th irreducible representation occurs in the reducible representation. According to (3) there are five irreducible representations in  $\Gamma_{(e)^2}$ . The new bases  $\varphi_k^{(i)}$  spanned by these are given by the following relation:

$$\varphi_k^{(i)} = \frac{n_i}{h} \sum_{\mathbf{R} \in G} \overline{\Gamma^{(i)}(\mathbf{R})}_{kk} \mathbf{R}f_\nu, \quad (9)$$

where  $\Gamma^{(i)}(\mathbf{R})_{kk}$  is the  $kk$  th matrix element belonging to the operation  $\mathbf{R}$  of the  $i$ th irreducible representation. The bar means the complex conjugate. The left side of the formula (9) does not depend on the suffix  $\nu$  appearing on the right side. (Details referring to the formulas (8) and (9) may be found e. g. in [11]). The new bases (normalized) given by (9) are:

$$\begin{aligned} \varphi_{(e)^2}^{(A_1)} &= 1/\sqrt{2} (f_1 + f_6); \\ \varphi_{(e)^2}^{(A_2)} &= f_2, \quad \varphi_{(e)^2}^{(A_2)'} = f_5, \quad \varphi_{(e)^2}^{(A_2)''} = 1/\sqrt{2} (f_3 + f_4); \\ \varphi_{(e)^2,1}^{(E)} &= 1/\sqrt{2} (f_3 - f_4), \quad \varphi_{(e)^2,2}^{(E)} = 1/\sqrt{2} (f_1 - f_6). \end{aligned} \quad (10)$$

These six functions form the system  $\varphi_{(e)^2}$  of the functions of the kind  $(e)^2$ .

The space of the configuration  $(e)(\varepsilon)$  is spanned by the functions:

$$\begin{aligned} h_1 &= e^{(\cdot)}_1 \varepsilon^{(\cdot)}_1, & h_3 &= e^{(\cdot)}_2 \varepsilon^{(\cdot)}_1, \\ h_2 &= e^{(\cdot)}_1 \varepsilon^{(\cdot)}_2, & h_4 &= e^{(\cdot)}_2 \varepsilon^{(\cdot)}_2. \end{aligned} \quad (11)$$

The functions  $\mathbf{R}h_k$  ( $k = 1, 2, 3, 4$ ) are to be found in the Table XII, from where the traces of the representations obtained in the four-dimensional space of these can be read (cf. Table I, last row). (4) can be attained by the help of these traces



**Table XI**  
Transformation properties of functions  $f_k$

	<b>E</b>	$C_3^{(1)}$	$C_3^{(2)}$	$C_2^{(1)}$	$C_2^{(2)}$	$C_3^{(3)}$
$f_1$	$f_1$	$\frac{1}{4}f_1 + \frac{\sqrt{3}}{4}f_3 -$ $-\frac{\sqrt{3}}{4}f_4 + \frac{3}{4}f_6$	$\frac{1}{4}f_1 - \frac{\sqrt{3}}{4}f_3 +$ $+\frac{\sqrt{3}}{4}f_4 + \frac{3}{4}f_6$	$f_1$	$\frac{1}{4}f_1 - \frac{\sqrt{3}}{4}f_3 +$ $+\frac{\sqrt{3}}{4}f_4 - \frac{3}{4}f_6$	$\frac{1}{4}f_1 + \frac{\sqrt{3}}{4}f_3 -$ $-\frac{\sqrt{3}}{4}f_4 + \frac{3}{4}f_6$
$f_2$	$f_2$	$f_2$	$f_2$	$-f_2$	$-f_2$	$-f_2$
$f_3$	$f_3$	$-\frac{\sqrt{3}}{4}f_1 + \frac{1}{4}f_3 +$ $+\frac{3}{4}f_4 + \frac{\sqrt{3}}{4}f_6$	$\frac{\sqrt{3}}{4}f_1 + \frac{1}{4}f_3 +$ $+\frac{3}{4}f_4 - \frac{\sqrt{3}}{4}f_6$	$-f_3$	$-\frac{\sqrt{3}}{4}f_1 - \frac{1}{4}f_3 -$ $-\frac{3}{4}f_4 + \frac{\sqrt{3}}{4}f_6$	$\frac{\sqrt{3}}{4}f_1 - \frac{1}{4}f_3 -$ $-\frac{3}{4}f_4 - \frac{\sqrt{3}}{4}f_6$
$f_4$	$f_4$	$\frac{\sqrt{3}}{4}f_1 + \frac{3}{4}f_3 +$ $+\frac{1}{4}f_4 - \frac{\sqrt{3}}{4}f_6$	$-\frac{\sqrt{3}}{4}f_1 + \frac{3}{4}f_3 +$ $+\frac{1}{4}f_4 + \frac{\sqrt{3}}{4}f_6$	$-f_4$	$\frac{\sqrt{3}}{4}f_1 - \frac{3}{4}f_3 -$ $-\frac{1}{4}f_4 - \frac{\sqrt{3}}{4}f_6$	$-\frac{\sqrt{3}}{4}f_1 - \frac{3}{4}f_3 -$ $-\frac{1}{4}f_4 + \frac{\sqrt{3}}{4}f_6$
$f_5$	$f_5$	$f_5$	$f_5$	$-f_5$	$-f_5$	$-f_5$
$f_6$	$f_6$	$\frac{3}{4}f_1 - \frac{\sqrt{3}}{4}f_3 +$ $+\frac{\sqrt{3}}{4}f_4 + \frac{1}{4}f_6$	$\frac{3}{4}f_1 + \frac{\sqrt{3}}{4}f_3 -$ $-\frac{\sqrt{3}}{4}f_4 + \frac{1}{4}f_6$	$f_6$	$\frac{3}{4}f_1 + \frac{\sqrt{3}}{4}f_3 -$ $-\frac{\sqrt{3}}{4}f_4 + \frac{1}{4}f_6$	$\frac{3}{4}f_1 - \frac{\sqrt{3}}{4}f_3 +$ $+\frac{\sqrt{3}}{4}f_4 + \frac{1}{4}f_6$

**Table XII**  
Transformation properties of functions  $h_k$

	<b>E</b>	$C_3^{(1)}$	$C_3^{(2)}$	$C_2^{(1)}$	$C_2^{(2)}$	$C_2^{(3)}$
$h_1$	$h_1$	$\frac{1}{4} h_1 + \frac{\sqrt{3}}{4} h_2 +$ $+\frac{\sqrt{3}}{4} h_3 + \frac{3}{4} h_4$	$\frac{1}{4} h_1 - \frac{\sqrt{3}}{4} h_2 -$ $-\frac{\sqrt{3}}{4} h_3 + \frac{3}{4} h_4$	$h_1$	$\frac{1}{4} h_1 - \frac{\sqrt{3}}{4} h_2 -$ $-\frac{\sqrt{3}}{4} h_3 + \frac{3}{4} h_4$	$\frac{1}{4} h_1 + \frac{\sqrt{3}}{4} h_2 +$ $+\frac{\sqrt{3}}{4} h_3 + \frac{3}{4} h_4$
$h_2$	$h_2$	$-\frac{\sqrt{3}}{4} h_1 + \frac{1}{4} h_2 -$ $-\frac{3}{4} h_3 + \frac{\sqrt{3}}{4} h_4$	$\frac{\sqrt{3}}{4} h_1 + \frac{1}{4} h_2 -$ $-\frac{3}{4} h_3 - \frac{\sqrt{3}}{4} h_4$	$-h_2$	$-\frac{\sqrt{3}}{4} h_1 - \frac{1}{4} h_2 +$ $+\frac{3}{4} h_3 + \frac{\sqrt{3}}{4} h_4$	$\frac{\sqrt{3}}{4} h_1 - \frac{1}{4} h_2 +$ $+\frac{3}{4} h_3 - \frac{\sqrt{3}}{4} h_4$
$h_3$	$h_3$	$-\frac{\sqrt{3}}{4} h_1 - \frac{3}{4} h_2 +$ $+\frac{1}{4} h_3 + \frac{\sqrt{3}}{4} h_4$	$\frac{\sqrt{3}}{4} h_1 - \frac{3}{4} h_2 +$ $+\frac{1}{4} h_3 - \frac{\sqrt{3}}{4} h_4$	$-h_3$	$-\frac{\sqrt{3}}{4} h_1 + \frac{3}{4} h_2 -$ $-\frac{1}{4} h_3 + \frac{\sqrt{3}}{4} h_4$	$\frac{\sqrt{3}}{4} h_1 + \frac{3}{4} h_2 -$ $-\frac{1}{4} h_3 - \frac{\sqrt{3}}{4} h_4$
$h_4$	$h_4$	$\frac{3}{4} h_1 - \frac{\sqrt{3}}{4} h_2 -$ $-\frac{\sqrt{3}}{4} h_3 + \frac{1}{4} h_4$	$\frac{3}{4} h_1 + \frac{\sqrt{3}}{4} h_2 +$ $+\frac{\sqrt{3}}{4} h_3 + \frac{1}{4} h_4$	$h_4$	$\frac{3}{4} h_1 + \frac{\sqrt{3}}{4} h_2 +$ $+\frac{\sqrt{3}}{4} h_3 + \frac{1}{4} h_4$	$\frac{3}{4} h_1 - \frac{\sqrt{3}}{4} h_2 -$ $-\frac{\sqrt{3}}{4} h_3 - \frac{1}{4} h_4$



and by (8). Hence the new bases using (9) are:

$$\begin{aligned}\varphi_{(e)(e)}^{(A_1)} &= 1/\sqrt{2}(\mathbf{h}_1 + \mathbf{h}_4); & \varphi_{(e)(e)}^{(A_2)} &= 1/\sqrt{2}(\mathbf{h}_2 - \mathbf{h}_3); \\ \varphi_{(e)(e),1}^{(E)} &= 1/\sqrt{2}(\mathbf{h}_2 + \mathbf{h}_3), & \varphi_{(e)(e),2}^{(E)} &= 1/\sqrt{2}(\mathbf{h}_1 - \mathbf{h}_4).\end{aligned}\quad (12)$$

Substituting (7) into (10) and (11) into (12) we immediately obtain the multiplicities.

#### REFERENCES

1. H. BETHE, *Ann. Physik* (5), **3**, 133, 1929.
2. L. E. ORGEL, *J. Chem. Soc. London*, 1756, 1952.
3. Y. TANABE and S. SUGANO, *J. Phys. Soc. Japan*, **9**, 753, 766, 1954.
4. L. E. ORGEL, *J. Chem. Phys.*, **23**, 1004, 1955.
5. C. K. JØRGENSEN, *Acta Chem. Scand.*, **9**, 116, 1955.
6. A. KISS, *Acta Chim. Hung.*, **10**, 39, 1956; **11**, 113, 1957; **17**, 225, 1958.
7. R. FINKELSTEIN and J. H. VAN VLECK, *J. Chem. Phys.*, **8**, 790, 1940; C. J. BALLHAUSEN, *Rec. Trav. Chim. Pays-Bas*, **75**, 668, 1956; R. A. SATTEN and D. J. YOUNG, *J. Chem. Phys.*, **23**, 404, 1955; C. K. JØRGENSEN, *Acta Chem. Scand.*, **9**, 405, 1955.
8. F. J. GILDE and M. I. BÁN, *Acta Phys. Chem. Szeged*, **5**, 3, 1959.
9. H. EYRING, J. WALTER and G. E. KIMBALL, *Quantum Chemistry*, John Wiley and Sons, London, 1944.
10. K. W. H. STEVENS, *Proc. Roy. Soc. London*, **A 219**, 542, 1953.
11. E. WIGNER, *Gruppentheorie und ihre Anwendung auf die Quantenmechanik der Atom-spektren*, Vieweg, Braunschweig, 1931.

#### РАСЩЕПЛЕНИЕ $d^n$ -УРОВНЕЙ ПОД ВЛИЯНИЕМ СИЛЬНЫХ ТРИГОНАЛЬНЫХ И РОМБИЧЕСКИХ КОМПЛЕКСНЫХ ПОЛЕЙ

Ф. Й. ГИЛДЕ и М. И. БА́Н

#### Резюме

Свойства комплексных соединений переходных металлов, в основном, определяются их  $d$ -электронами. Были вычислены все конфигурации сильных комплексных полей, возникающие из электрон-конфигурации  $d^n$  ( $n = 1, 2, \dots, n$ ) под влиянием сильных комплексных полей, которые имеют тригональную и ромбическую симметрию. Было определено число уровней, возникающих расщеплением конфигураций сильных комплексных полей из-за сильных полей. Кроме того, установлено, к какой группе симметрии относятся продукты расщепления и какой мультиплетностью они обладают. Был разработан новый метод для классификации продуктов расщепления. Этот способ является экзактным, так как основывается только лишь на группово-теоретических соображениях.

# КВАНТОВАЯ ТЕОРИЯ ОДНООСНО-АНИЗОТРОПНЫХ ФЕРРОМАГНЕТИКОВ

С. В. ТЯБЛИКОВ

МАТЕМАТИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ ИМ. В. А. СТЕКЛОВА АН СССР, МОСКВА, СССР

Т. ШИКЛОШ

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ, ДУБНА, СССР

(Представлено К. Ф. Новобацки. — Поступило 5. II. 1960)

Анизотропия магнитных свойств ферромагнитных кристаллов рассматривается как следствие анизотропии по направлениям взаимодействия электронов незаполненных оболочек. Для расчета намагниченности в зависимости от температуры и внешнего магнитного поля применяем двухвременные запаздывающие и опережающие функции Грина по методу, изложенному в работах [1, 2]. Полученные результаты годны для всего интервала температур и внешних магнитных полей.

1. В гайзенберговской модели анизотропный ферромагнетик описывается гамильтонианом вида:

$$\tilde{H} = -\mu_0 \sum_{(f_1, \alpha)} \mathcal{H}^\alpha S_{f_1}^\alpha - \frac{1}{2} \sum_{(f_1, f_2, \alpha_1, \alpha_2)} I_{\alpha_1 \alpha_2}(f_1, f_2) S_{f_1}^{\alpha_1} S_{f_2}^{\alpha_2}, \quad (1.1)$$

где  $S_f^\alpha$   $\alpha$ -компонента оператора спина электрона, находящегося в узле  $f$  решетки (в единицах  $\frac{\hbar}{2}$ );  $\mu_0$  — магнетон Бора;  $\mathcal{H}$  — внешнее магнитное поле;  $I_{\alpha_1 \alpha_2}(f_1, f_2) = I_{\alpha_1 \alpha_2}(|f_1 - f_2|) > 0$  — тензор обменного взаимодействия. В случае одноосного кристалла тензор обменного взаимодействия может быть записан в виде:

$$I_{\alpha_1 \alpha_2}(f_1, f_2) = I_{\alpha_1 \alpha_2}(|f_1, f_2|) \delta_{\alpha_1 \alpha_2}, \quad (1.2)$$

Введем обозначения

$$\begin{aligned} I_{xx}(|f_1 - f_2|) &= I_{yy}(|f_1 - f_2|) = I(f_1, f_2), \\ I_{zz}(|f_1 - f_2|) &= I(f_1, f_2) + \Delta(f_1, f_2) = I_1(f_1, f_2), \\ \Delta(f_1, f_2) &= \Delta(|f_1 - f_2|). \end{aligned} \quad (1.3)$$

Тогда гамильтониан (1.1) для одноосного анизотропного ферромагнетика имеет вид:

$$\tilde{H} = -\mu_0 \sum_{(f_1, \alpha)} \mathcal{H}^\alpha S_{f_1}^\alpha - \frac{1}{2} \sum_{(f_1, f_2, \alpha)} I(f_1, f_2) S_{f_1}^\alpha S_{f_2}^\alpha - \frac{1}{2} \sum_{(f_1, f_2)} \Delta(f_1, f_2) S_{f_1}^z S_{f_2}^z. \quad (1.4)$$



Перейдем от спиновых операторов к паулевским с помощью преобразования:

$$S_f^a = \gamma_f^a(1 - 2n_f) + A_f^a b_f + \dot{A}_f^a b_f^* \quad (n_f = b_f^+ b_f), \quad (1.5)$$

где  $\vec{\gamma}_f$  векторный коэффициент преобразования, подчиняющийся условию:

$$A_f^x = -\frac{\gamma_f^x \gamma_f^z}{\eta_f^z} - i \frac{\gamma_f^y}{\eta_f^z}; \quad A_f^y = -\frac{\gamma_f^y \gamma_f^z}{\eta_f^z} + i \frac{\gamma_f^x}{\eta_f^z}; \quad A_f^z = \eta_f^z \quad (1.6)$$

$$\eta_f^z = \{(\gamma_f^x)^2 + (\gamma_f^y)^2\}^{1/2}$$

для векторов  $A_f$  и  $\dot{A}_f^*$  имеют место следующие соотношения:

$$(\dot{A}_f^* A_f) = 2; \quad (A_f A_f) = (\dot{A}_f^* \dot{A}_f) = (A_f \gamma_f) = (\dot{A}_f^* \gamma_f) = 0.$$

Операторы  $b_f$  и  $b_f^+$  подчиняются перестановочным соотношениям Паули.

В настоящей работе мы рассмотрим одномоновый анизотропный ферромагнетник, все узлы решетки которого заполнены ионами одного сорта, и поэтому положим  $\gamma_f^a = \gamma_a$ .

Гамильтониан (1.4) с помощью преобразования (1.5) преобразуем к виду:

$$\tilde{H} = E_0 + H_1 + H_2 + H_3 + H_4, \quad (1.7)$$

где

$$E_0 = -\mu_0(\mathcal{H}\gamma) - \frac{1}{2} N \{I(0) + \gamma_z^2 \Delta(0)\},$$

$$H_1 = -\mu_0(\mathcal{H}A) \sum_{(f_1)} b_{f_1} - \mu_0(\mathcal{H}\dot{A}^*) \sum_{(f_1)} b_{f_1}^+ - \gamma_z \eta_z \sum_{(f_1, f_2)} \Delta(f_1, f_2) \{b_{f_1} + b_{f_2}^+\},$$

$$H_2 = 2\mu_0(\mathcal{H}\gamma) \sum_{(f_1)} n_{f_1} + \sum_{(f_1, f_2)} 2 \{I(f_1, f_2) + \gamma_z^2 \Delta(f_1, f_2)\} n_{f_1} - \sum_{(f_1, f_2)} \{2I(f_1, f_2) + \eta_z^2 \Delta(f_1, f_2)\} b_{f_1}^+ b_{f_2} - \frac{1}{2} \eta_z^2 \sum_{(f_1, f_2)} \Delta(f_1, f_2) \{b_{f_1} b_{f_2} + b_{f_1}^+ b_{f_2}^+\},$$

$$H_3 = \gamma_z \eta_z \sum_{(f_1, f_2)} 2\Delta(f_1, f_2) n_{f_1} (b_{f_2} + b_{f_2}^+), \quad (1.8)$$

$$H_4 = -\sum_{(f_1, f_2)} 2 \{I(f_1, f_2) + \gamma_z^2 \Delta(f_1, f_2)\} n_{f_1} n_{f_2},$$

$$I(0) = \frac{1}{N} \sum_{(f_1, f_2)} I(f_1, f_2); \quad \Delta(0) = \frac{1}{N} \sum_{(f_1, f_2)} \Delta(f_1, f_2).$$

$N$  — число узлов решетки.

Относительная намагниченность определяется соотношением:

$$M^a = \langle S_f^a \rangle = \gamma_a \langle 1 - 2n_f \rangle + A^a \langle b_f \rangle + \tilde{A}_a^* \langle b_f^+ \rangle. \quad (1.9)$$

Определяя  $i \frac{db_g(t)}{dt}$  и  $i \frac{db_g^+(t)}{dt}$  из уравнения движения

$$i\dot{b}_g(t) = [b_g, \tilde{H}]; \quad i\dot{b}_g^+(t) = [b_g^+, \tilde{H}]$$

получим следующее уравнение для функций Грина  $\ll b_g(t) | b_f^+(t') \gg$  и  $\ll b_g^+(t) | b_f^+(t') \gg$ :

$$\begin{aligned} i \frac{d}{dt} \ll b_g(t) | b_f^+(t') \gg &= i\delta(t-t') \delta_{gf} \sigma + 2 \{ \mu_0 (\mathcal{H} A) + \\ &+ \gamma_z \eta_z \Delta(0) \} \ll n_g(t) | b_f^+(t') \gg + 2 \{ \mu_0 (\mathcal{H} \gamma) + I(0) + \\ &+ \gamma_z^2 \Delta(0) \} \ll b_g(t) | b_f^+(t') \gg - \sum_{(p)} \{ 2I(gp) + \eta_z^2 \Delta(gp) \} \{ \ll b_p(t) | b_f^+(t') \gg - \\ &- 2 \ll n_g(t) b_p(t) | b_f^+(t') \gg \} - \eta_z^2 \sum_{(p)} \Delta(gp) \{ \ll b_p^+(t) | b_f^+(t') \gg - \\ &- 2 \ll n_g(t) b_p^+(t) | b_f^+(t') \gg \} + \gamma_z \eta_z \sum_{(p)} 2\Delta(gp) \{ \ll n_p(t) | b_f^+(t') \gg + \\ &+ \ll b_g(t) b_p(t) | b_f^+(t') \gg + \\ &+ \ll b_g(t) b_p^+(t) | b_f^+(t') \gg - 2 \ll n_p(t) n_g(t) | b_f^+(t') \gg \} - \\ &- 2 \sum_{(p)} 2 \{ I(gp) + \gamma_z^2 \Delta(gp) \} \ll n_p(t) b_g(t) | b_f^+(t') \gg, \end{aligned} \quad (1.10)$$

$$\begin{aligned} i \frac{d}{dt} \ll b_g^+(t) | b_f^+(t') \gg &= -2 \{ u_0 (\mathcal{H} A) + \gamma_z \eta_z \Delta(0) \} \ll n_g(t) | b_f^+(t') \gg - \\ &- 2 \{ \mu_0 (\mathcal{H} \gamma) + I(0) + \gamma_z^2 \Delta(0) \} \ll b_g^+(t) | b_f^+(t') \gg + \\ &+ \sum_{(p)} \{ 2I(gp) + \eta_z^2 \Delta(gp) \} \{ \ll b_p^+(t) | b_f^+(t') \gg - 2 \ll n_g(t) b_p^+(t) | b_f^+(t') \gg \} + \\ &+ \eta_z^2 \sum_{(p)} \Delta(gp) \{ \ll b_p(t) | b_f^+(t') \gg - 2 \ll n_g(t) b_p(t) | b_f^+(t') \gg \} - \\ &- \gamma_z \eta_z \sum_{(p)} 2\Delta(gp) \{ \ll n_p(t) | b_f^+(t') \gg + \ll b_p^+(t) b_p^+(t) | b_f^+(t') \gg + \\ &+ \ll b_g^+(t) b_p(t) | b_f^+(t') \gg - 2 \ll n_p(t) n_g(t) | b_f^+(t') \gg \} + \\ &+ 2 \sum_{(p)} 2 \{ I(gp) + \gamma_z^2 \Delta(gp) \} \ll n_p(t) b_g^+(t) | b_f^+(t') \gg, \end{aligned} \quad (1.11)$$

где

$$\sigma = 1 - 2 \langle n_f \rangle = 1 - 2 \bar{n}.$$

Для функций Грина  $\ll b_g(t) | b_f(t') \gg$  и  $\ll b_g^+(t) | b_f(t') \gg$  получаются аналогичные уравнения.



2. Для расщепления уравнений (1.10 и 1.11) операторы Паули  $b_f$  и  $b^+$  представим в виде:

$$b_g(t) = \beta + \mu_g(t) ; \quad b_g^+(t) = \beta^* + \mu_g^+(t), \quad (21)$$

где  $\mu_g(t)$  и  $\mu_g^+(t)$  новые операторы, для которых нетрудно записать перестановочные соотношения, однако, эти перестановочные соотношения нам не потребуются, а  $\beta$  и  $\beta^*$   $c$ -числа, причем

$$\begin{aligned} \beta = x + iy = \langle b_g(t) \rangle ; \quad \beta^* = x - iy = \langle b_g^+(t) \rangle, \\ \langle \mu_g(t) \rangle = \langle \mu_g^+(t) \rangle = 0. \end{aligned} \quad (2.2')$$

Тогда

$$\begin{aligned} \langle\langle b_g(t)|b_f^+(t') \rangle\rangle &= \langle\langle \mu_g(t)|\mu_f^+(t') \rangle\rangle = G_{gf}^{(1)}, \\ \langle\langle b_g^+(t)|b_f^+(t') \rangle\rangle &= \langle\langle \mu_g^+(t)|\mu_f^+(t') \rangle\rangle = G_{gf}^{(2)}, \\ \langle\langle b_g(t)|b_f(t') \rangle\rangle &= \langle\langle \mu_g(t)|\mu_f(t') \rangle\rangle = G_{gf}^{(3)}, \\ \langle\langle b_g^+(t)|b_f(t') \rangle\rangle &= \langle\langle \mu_g^+(t)|\mu_f(t') \rangle\rangle = G_{gf}^{(4)}. \end{aligned} \quad (2.2)$$

Используя (2.1), операторы  $n_g(t)$ ;  $b_p(t) b_g(t)$ ;  $b_p^+(t) b_g(t)$ ;  $b_p^+(t) b_g^+(t)$  могут быть записаны в виде:

$$\begin{aligned} n_g(t) &= \bar{n} + \Omega_{gg}(t) + \beta^* \mu_g(t) + \beta \mu_g^+(t), \\ b_f^+(t) b_g(t) &= \bar{n}_{pg} + \Omega_{pg}(t) + \beta^* \mu_g(t) + \beta \mu_p^+(t), \\ b_b(t) b_g(t) &= \bar{m}_{pg} + \Xi_{pg}(t) + \beta \mu_g(t) + \beta \mu_p(t), \\ b_f^+(t) b_g^+(t) &= \bar{m}_{pg}^* + \Xi_{pg}^+(t) + \beta^* \mu_g^+(t) + \beta^* \mu_p^+(t), \end{aligned} \quad (2.3)$$

где

$$\begin{aligned} \bar{n} &= \langle b_g^+(t) b_g(t) \rangle = \beta^* \beta + \langle \mu_g^+(t) \mu_g(t) \rangle ; \\ \bar{n}_{pg} &= \langle b_p^+(t) b_g(t) \rangle = \beta^* \beta + \langle \mu_p^+(t) \mu_g(t) \rangle, \\ \bar{m}_{pg} &= \langle b_p(t) b_g(t) \rangle = \beta \beta + \langle \mu_p(t) \mu_g(t) \rangle ; \\ \bar{m}_{pg}^* &= \langle b_p^+(t) b_g^+(t) \rangle = \beta^* \beta^* + \langle \mu_p^+(t) \mu_g^+(t) \rangle, \\ \Omega_{gg}(t) &= \mu_g^+(t) \mu_g(t) - \langle \mu_g^+(t) \mu_g(t) \rangle ; \\ \Omega_{pg}(t) &= \mu_p^+(t) \mu_g(t) - \langle \mu_p^+(t) \mu_g(t) \rangle, \\ \Xi_{pg}(t) &= \mu_p(t) \mu_g(t) - \langle \mu_p(t) \mu_g(t) \rangle ; \\ \Xi_{pg}^+(t) &= \mu_p^+(t) \mu_p^+(t) - \langle \mu_p^+(t) \mu_p^+(t) \rangle, \\ \langle \Omega_{gg}(t) \rangle &= \langle \Omega_{pg}(t) \rangle = \langle \Xi_{pg}(t) \rangle = \langle \Xi_{pg}^+(t) \rangle = 0. \end{aligned} \quad (2.4)$$

При  $p = g$  имеют место следующие соотношения:

$$\begin{aligned} \beta\beta &= - \langle \mu_g(t) \mu_g(t) \rangle ; \quad \beta^* \beta^* = - \langle \mu_g^+(t) \mu_g^+(t) \rangle ; \\ \Xi_{gg}(t) &= - 2 \beta \mu_g(t) ; \quad \Xi_{gg}^+(t) = - 2 \beta^* \mu_g^+(t). \end{aligned} \tag{2.5}$$

Используя представление (2.1) и формулы (2.3) нетрудно убедиться в том, что все встречающиеся в уравнениях (1.10) функции Грина могут быть выражены через  $G_{ff}^{(i)}$  и высшие функции, последние содержат произведения  $\mu(t)$  и  $\mu^+(t)$  в большем числе.

В первом приближении оставляем лишь низшие функции Грина и пренебрегаем высшими функциями. Тогда для функции  $G_{ff}^{(i)}$  из (1.10) и (1.11) и из аналогичной системы уравнений для  $\ll b_g(t) | b_f(t') \gg$  и  $\ll b_g^+(t) | b_f(t') \gg$  получаем следующие системы уравнений:

$$i \dot{G}_{gf}^{(1)} = a_{11}(0) G_{gf}^{(1)} + a_{12}(0) G_{gf}^{(2)} - \sum_{(p)} a_{13}(gp) G_{pf}^{(1)} - \sum_{(p)} a_{14}(gp) G_{pf}^{(2)} + i\delta(t-t') \delta_{fg} \sigma, \tag{2.6}$$

$$i \dot{G}_{gf}^{(2)} = - a_{21}(0) G_{gf}^{(1)} - a_{22}(0) G_{gf}^{(2)} + \sum_{(p)} a_{23}(gp) G_{pf}^{(1)} + \sum_{(p)} a_{24}(gp) G_{pf}^{(2)};$$

$$i \dot{G}_{gf}^{(3)} = a_{11}(0) G_{gf}^{(3)} + a_{12}(0) G_{gf}^{(4)} - \sum_{(p)} a_{13}(gp) G_{pf}^{(3)} - \sum_{(p)} a_{14}(gp) G_{pf}^{(4)}, \tag{2.7}$$

$$i \dot{G}_{gf}^{(4)} = - a_{21}(0) G_{gf}^{(2)} - a_{22}(0) G_{gf}^{(4)} + \sum_{(p)} a_{23}(gp) G_{pf}^{(3)} + \sum_{(p)} a_{24}(gp) G_{pf}^{(4)} - i\delta(t-t') \delta_{fg} \sigma.$$

Для коэффициентов  $a_{ik}$  имеют место следующие соотношения:

$$\begin{aligned} a_{11}(0) &= \dot{a}_{22}(0) ; & a_{12}(0) &= \dot{a}_{21}(0) ; \\ a_{13}(gp) &= \dot{a}_{24}(gp) ; & a_{14}(gp) &= \dot{a}_{23}(gp). \end{aligned} \tag{2.8}$$

Системы уравнений (2.6) и (2.7) аналогичны системам уравнений (3.5) и (3.6), полученным в работе [2]. Сами коэффициенты  $a_{ik}$  зависят от величины магнитного поля ( $\mu \cdot \mathcal{H}$ ) и обменных интегралов ( $I$  и  $\Delta$ ) и имеют несколько более сложный вид, чем в [2]. При  $\Delta = 0$  они переходят в соответствующие выражения работы [2]. Повторяя все расчеты по работе [2], получаем для корреляционных функций следующие выражения:

$$\begin{aligned} \langle \mu_g \mu_f^+ \rangle &= \frac{\sigma}{2} \frac{v}{(2\pi)^3} \int e^{i(g-f \cdot k)} d\vec{k} + \frac{\sigma}{2} \frac{v}{(2\pi)^3} \int e^{i(g-f \cdot k)} \frac{A_k}{E_k} \text{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}, \\ \langle \mu_g^+ \mu_f \rangle &= - \frac{\sigma}{2} \frac{v}{(2\pi)^3} \int e^{i(g-f \cdot k)} d\vec{k} + \frac{\sigma}{2} \frac{v}{(2\pi)^3} \int e^{i(g-f \cdot k)} \frac{A_k}{E_k} \text{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}, \\ \langle \mu_g^+ \mu_f^+ \rangle &= - \frac{\sigma}{2} \frac{v}{(2\pi)^3} \int e^{i(g-f \cdot k)} \frac{B_k^{(2)}}{E_k} \text{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}, \\ \langle \mu_g \mu_f \rangle &= - \frac{\sigma}{2} \frac{v}{(2\pi)^3} \int e^{i(g-f \cdot k)} \frac{B_k^{(1)}}{E_k} \text{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}, \end{aligned} \tag{2.9}$$



где

$$\begin{aligned}
 A_k = 2 \left\{ \mu_0 (\mathcal{H} \gamma) + \sigma \left[ I(0) + \gamma_z^2 \Delta(0) - I(k) - \frac{1}{2} \eta_z^2 \Delta(k) \right] + \right. \\
 + 2\beta^* \beta \left[ I(0) + \frac{1}{2} \eta_z^2 \Delta(0) - I(k) - \gamma_z^2 \Delta(k) \right] + \frac{\beta + \beta^*}{2} [\Delta(0)(\sigma + 2) + \\
 + \Delta(k)(\sigma + 1)] \gamma_z \eta_z + \frac{1}{2} [\mu_0 (\mathcal{H} \dot{A}^*) \beta^* + \mu_0 (\mathcal{H} A) \beta + \\
 \left. + \eta_z^2 \Delta(0) (\beta^* \beta^* + \beta \beta) \right\}, \\
 B_k^{(1)} = \dot{B}_k^{(2)} = -\eta_z^2 \Delta(k) \sigma + 2\beta \left\{ \mu_0 (\mathcal{H} \dot{A}^*) + 2\beta \left[ I(0) + \frac{1}{2} \eta_z^2 \Delta(0) - \right. \right. \\
 \left. \left. - I(k) - \gamma_z^2 \Delta(k) \right] + \Delta(0) [\eta_z^2 \beta^* + \gamma_z \eta_z \sigma] \right\}, \quad (2.10)
 \end{aligned}$$

$$E_k = \{A_k^2 - B_k^{(1)} B_k^{(2)}\}^{1/2}.$$

Полагая  $g = f$  в выражении (2.9) и используя (1.11), (2.1'), (2.4), получаем уравнения для  $\sigma$ ,  $\beta$ ,  $\beta^*$ :

$$x^2 + y^2 = \frac{1}{2} - \frac{\sigma}{2} \frac{v}{(2\pi)^3} \int \frac{A_k}{E_k} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}, \quad (2.11)$$

$$x^2 - y^2 = \frac{\sigma}{2} \frac{v}{(2\pi)^3} \int \frac{\operatorname{Re} B_k^{(1)}}{E_k} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}, \quad (2.12)$$

$$2xy = \frac{\sigma}{2} \frac{v}{(2\pi)^3} \int \frac{\operatorname{Im} B_k^{(1)}}{E_k} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}. \quad (2.13)$$

Вектор преобразования  $\vec{\gamma}$  определяется из условий минимума свободной энергии

$$\frac{\partial F}{\partial \gamma_a} + \lambda \gamma_a = 0, \quad (2.14)$$

где

$$\frac{\partial F}{\partial \gamma_a} = S_p \left\{ \frac{\partial \tilde{H}}{\partial \gamma_a} e^{-\frac{\tilde{H}}{\vartheta}} \right\}. \quad (2.15)$$

Выражение (2.15) мы можем рассчитать, используя (2.1), (2.3), (2.4), (2.9). При расчете (2.15) мы пренебрегаем более высокими корреляционными функциями типа  $\langle \Omega_{gg}(t) \mu_p(t) \rangle$ ;  $\langle \Omega_{gg}(t) \Omega_{pp}(t) \rangle$  и т. д., которые в первом

приближении (уравнения (1.10)) не могут быть рассчитаны, и тогда (2.14) дает следующую систему уравнений для определения  $\gamma_\alpha$ :

$$\begin{aligned}
 & -\mu_0 \mathcal{H}_x N\sigma - 2N \frac{1}{\eta_z^2} \left\{ \mu_0 \mathcal{H}_z \gamma_x \eta_z^2 - \mu_0 \mathcal{H}_x \gamma_z^2 \gamma_z + \mu_0 \mathcal{H}_y \gamma_x \gamma_y \gamma_z + \right. \\
 & \left. + \gamma_x \eta_z^2 \Delta(0) [\eta_z x + \sigma \gamma_z] \right\} x - 2N \frac{\mu_0}{\eta_z^2} \{ \mathcal{H}_x \gamma_x - \mathcal{H}_y \gamma_y \} y + \\
 & + \left\{ \lambda_0 + \frac{N\sigma}{\eta_z} [\gamma_z \Omega_2 - \eta_z \Omega_1] \right\} \gamma_x = 0,
 \end{aligned} \tag{2.16}$$

$$\begin{aligned}
 & -\mu_0 \mathcal{H}_y N\sigma - 2N \frac{1}{\eta_z^2} \left\{ \mu_0 \mathcal{H}_z \gamma_y \eta_z^2 + \mu_0 \mathcal{H}_x \gamma_x \gamma_y \gamma_z - \mu_0 \mathcal{H}_y \gamma_y \gamma_z^2 \gamma_z + \right. \\
 & \left. + \gamma_y \eta_z^2 \Delta(0) [\eta_z x + \sigma \gamma_z] \right\} x - 2N \frac{\mu_0}{\eta_z^2} \{ \mathcal{H}_x \gamma_x - \mathcal{H}_y \gamma_y \} y + \\
 & + \left\{ \lambda_0 + \frac{N\sigma}{\eta_z} [\gamma_z \Omega_2 - \eta_z \Omega_1] \right\} \gamma_y = 0,
 \end{aligned} \tag{2.17}$$

$$\begin{aligned}
 & -\mu_0 \mathcal{H}_z N\sigma + 2N \frac{1}{\eta_z} \left\{ \mu_0 \mathcal{H}_x \gamma_x + \mu_0 \mathcal{H}_y \gamma_y - \eta_z^2 \sigma \Delta(0) \right\} x + \\
 & + N\sigma \eta_z \Omega_2 + \left\{ \lambda_0 - N\sigma [\Delta(0) \sigma + \Omega_3] \right\} \gamma_z = 0,
 \end{aligned} \tag{2.18}$$

где

$$\begin{aligned}
 \Omega_1 &= \frac{1}{2} \frac{v}{(2\pi)^3} \int \Delta(k) \frac{2A_k - B_k^{(1)} - B_k^{(2)}}{E_k} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\theta} d\vec{k}, \\
 \Omega_2 &= \frac{v}{(2\pi)^3} \int \Delta(k) \frac{A_k(\beta + \beta^*) - \beta^* B_k^{(1)} - \beta B_k^{(2)}}{E_k} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\theta} d\vec{k}, \\
 \Omega_3 &= 2 \frac{v}{(2\pi)^3} \int \Delta(k) \frac{2A_k \beta^* \beta - \beta^* \beta^* B_k^{(1)} - \beta \beta B_k^{(2)}}{E_k} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\theta} d\vec{k}.
 \end{aligned} \tag{2.19}$$

Итак, мы получили 6 уравнений (2.11) — (2.13), (2.16) — (2.18) для определения 6 неизвестных:  $\sigma$ ,  $x$ ,  $y$ ,  $\vec{\gamma}$ .

3. Для решения системы уравнений (2.11) — (2.13), (2.16) — (2.18) пользуемся методом итераций. В первом приближении положим  $\beta_0 = \beta_0^* = 0$ .

Тогда уравнения (2.16) — (2.18) имеют вид:

$$\begin{aligned}
 & -\mu_0 \mathcal{H}_x N\sigma + \left\{ \lambda_0 - \sigma N \Omega_1^{(1)} \right\} \gamma_x = 0, \\
 & -\mu_0 \mathcal{H}_y N\sigma + \left\{ \lambda_0 - \sigma N \Omega_1^{(0)} \right\} \gamma_y = 0, \\
 & -\mu_0 \mathcal{H}_z N\sigma + \left\{ \lambda_0 - N\sigma^2 \Delta(0) \right\} \gamma_z = 0,
 \end{aligned} \tag{3.1}$$



где

$$\Omega_1^{(0)} = \frac{1}{2} \frac{v}{(2\pi)^3} \int \Delta(k) \left\{ 1 + \frac{1}{8} Q(k) + \dots \right\} \text{cth} \frac{E_k^{(0)}}{2\vartheta} d\vec{k}, \quad (3.2)$$

$$E_k^{(0)} = 2 \left\{ \mu_0(\mathcal{H}\gamma) + \sigma [I(0) + \gamma_z^2 \Delta(0) - I(k)] \right\} \{1 - Q(k)\}^{1/2}, \quad (3.3)$$

$$Q(k) = \frac{\sigma \eta_z^2 \Delta(k)}{\mu_0(\mathcal{H}\gamma) + \sigma [I(0) + \gamma_z^2 \Delta(0) - I(k)]}.$$

Определяя  $\vec{\gamma}$  из (3.1), полученное значение  $\vec{\gamma}$  подставим в уравнения (2.11) — (2.13), которые в первом приближении имеют вид:

$$\frac{1}{\sigma} = \frac{v}{(2\pi)^3} \int \frac{1 - \frac{1}{2} Q(k)}{(1 - Q(k))^{1/2}} \text{cth} \frac{E_k^{(0)}}{2\vartheta} d\vec{k}, \quad (3.4)$$

$$x_1^2 - y_1^2 = -\frac{\sigma^2}{2} \eta_z^2 \frac{v}{(2\pi)^3} \int \frac{\Delta(k)}{E_k^{(0)}} \text{cth} \frac{E_k^{(0)}}{2\vartheta} d\vec{k}, \quad (3.5)$$

$$2x_1 y_1 = 0. \quad (3.6)$$

Из уравнений (3.5) и (3.6) можем определить второе приближение  $\beta$  и  $\beta^*$ , а (3.4) является вообще первым приближением трансцендентного уравнения для  $\sigma$ . Из (1.9) видно, что при  $\beta = \beta^* = 0$

$$M^a = \gamma_a \sigma. \quad (3.7)$$

Заметим, что конкретный вид решения системы (3.1) зависит от знака анизотропной части обменного интеграла, от направления и величины внешнего магнитного поля. В дальнейшем рассмотрим отдельные случаи.

4. Рассмотрим сначала случай  $\Delta(0) > 0$ .

а) При  $\mathcal{H} = 0$  имеем следующее решение уравнений (3.1):

$$\gamma_z = \pm 1; \quad \gamma_x = \gamma_y = 0.$$

В этом случае итерация дает точное решение для  $\beta$  и  $\beta^*$ :

$$\beta = \beta^* = 0$$

и из (3.4) получим:

$$\frac{1}{\sigma} = \frac{v}{(2\pi)^3} \int \text{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}, \quad (4.1)$$

где

$$E_k = 2\sigma [I_1(0) - I(k)].$$

б)  $\mathcal{H}_x = \mathcal{H}_y = 0; \mathcal{H}_z \neq 0$ . Нетрудно убедиться в том, что в этом случае система уравнений (3.1), (3.4) — (3.6) имеет следующее точное решение:

$$\begin{aligned} \gamma_z &= 1; \quad \gamma_x = \gamma_y = 0, \\ \beta &= \beta^* = 0, \\ \frac{1}{\sigma} &= \frac{v}{(2\pi)^3} \int \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}, \\ E_k &= 2 \{ \mu_0 \mathcal{H}_z + \sigma [I_1(0) - I(k)] \}. \end{aligned} \quad (4.2)$$

в)  $\mathcal{H}_x \neq 0; \mathcal{H}_y \neq 0; \mathcal{H}_z = 0$ . В этом случае в зависимости от величины внешнего магнитного поля уравнения (3.1) дают два различных решения:

При  $\mu_0 \mathcal{H} \leq \sigma \Delta(0) - \Omega_1^{(0)}$   $|\mathcal{H}^2 = \mathcal{H}_x^2 + \mathcal{H}_y^2|$  имеем:

$$\gamma_x = \frac{\mu_0 \mathcal{H}_x}{\sigma \Delta(0) - \Omega_1^{(0)}}; \quad \gamma_y = \frac{\mu_0 \mathcal{H}_y}{\sigma \Delta(0) - \Omega_1^{(0)}}$$

или пренебрегая здесь членом  $\Omega_1^{(0)}$

$$\gamma_x = \frac{\mu_0 \mathcal{H}_x}{\sigma \Delta(0)}; \quad \gamma_y = \frac{\mu_0 \mathcal{H}_y}{\sigma \Delta(0)}; \quad \gamma_z = \left\{ 1 - \left( \frac{\mu_0 \mathcal{H}}{\sigma \Delta(0)} \right)^2 \right\}^{1/2}. \quad (4.3)$$

Тогда из (3.5), (3.6) получим во втором приближении для  $\beta$  и  $\beta^*$ :

$$x_1 = 0; \quad y_1 = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{\mu_0 \mathcal{H}}{\Delta(0)} \left\{ \frac{v}{(2\pi)^3} \int \frac{\Delta(k)}{E_k} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k} \right\}^{1/2}$$

и (3.4) в первом приближении дает для  $\sigma$ :

$$\frac{1}{\sigma} = \frac{v}{(2\pi)^3} \int \left\{ 1 + \frac{1}{8} \left[ \frac{\left( \frac{\mu_0 \mathcal{H}}{\sigma \Delta(0)} \right)^2 \Delta(k)}{I_1(0) - I(k)} \right]^2 + \dots \right\} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}, \quad (4.4)$$

$$E_k = 2\sigma [I_1(0) - I(k)] \left\{ 1 - \frac{\left( \frac{\mu_0 \mathcal{H}}{\sigma \Delta(0)} \right)^2 \Delta(k)}{I_1(0) - I(k)} \right\}^{1/2}.$$

При  $\mu_0 \mathcal{H} \geq \sigma \Delta(0) - \Omega_1^{(0)}$  имеем решение:

$$\gamma_x = \frac{\mathcal{H}_x}{\mathcal{H}}; \quad \gamma_y = \frac{\mathcal{H}_y}{\mathcal{H}}; \quad \mathcal{H}_z = 0. \quad (4.5)$$



$$\begin{aligned}
 x_1 = 0; \quad y_1 &= \frac{\sigma}{\sqrt{2}} \left\{ \frac{v}{(2\pi)^3} \int \frac{\Delta(k)}{E_k} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k} \right\}^{1/2}, \\
 \frac{1}{\sigma} &= \frac{v}{(2\pi)^3} \int \left\{ 1 + \frac{1}{8} \left( \frac{\sigma\Delta(k)}{\mu_0 \mathcal{H} + \sigma[I(0) - I(k)]} \right)^2 - \dots \right\} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}, \quad (4.6) \\
 E_k &= 2 \left\{ \mu_0 \mathcal{H} + \sigma[I(0) - I(k)] \right\} \left\{ 1 - \frac{\sigma\Delta(k)}{\mu_0 \mathcal{H} + \sigma[I(0) - I(k)]} \right\}^{1/2}.
 \end{aligned}$$

Легко видеть, что при  $\mu_0 \mathcal{H} = \sigma\bar{\Delta}$  выражения (4.3), (4.5) и (4.4), (4.6) совпадают.

5. Аналогичным образом можем рассматривать случай  $\Delta(0) < 0$ .

а) При  $\mathcal{H} = 0$  имеет место решение:

$$\begin{aligned}
 \eta_z = \pm 1, \quad \gamma_z = 0; \quad \beta_1 = \beta_1^*; \quad \beta_1 &= \frac{\sigma}{\sqrt{2}} \left\{ \frac{v}{(2\pi)^3} \int \frac{|\Delta(k)|}{E_k} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k} \right\}^{1/2}, \\
 \frac{1}{\sigma} &= \frac{v}{(2\pi)^3} \int \left\{ 1 + \frac{1}{8} \left( \frac{\Delta(k)}{I(0) - I(k)} \right)^2 + \dots \right\} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}, \quad (5.1) \\
 E_k &= 2\sigma[I(0) - I(k)] \left\{ 1 + \frac{|\Delta(k)|}{I(0) - I(k)} \right\}^{1/2}.
 \end{aligned}$$

б)  $\mathcal{H}_x = \mathcal{H}_y = 0$ ;  $\mathcal{H}_z \neq 0$ . В этом случае в зависимости от величины внешнего магнитного поля уравнения (3.1) дают два решения:

$$\begin{aligned}
 \gamma_z &= \frac{\mu_0 \mathcal{H}_z}{\sigma|\Delta(0)| - |\Omega_1^{(0)}|} \approx \frac{\mu_0 \mathcal{H}_z}{\sigma|\Delta(0)|}; \\
 \eta_z &\approx \left\{ 1 - \left( \frac{\mu_0 \mathcal{H}_z}{\sigma\Delta(0)} \right)^2 \right\}^{1/2} \quad \text{при } \mu_0 \mathcal{H}_z \leq \sigma|\Delta(0)| - \Omega_1^{(0)}, \\
 \beta_1 = \beta_1^*; \quad \beta_1 &= \frac{\sigma}{\sqrt{2}} \left[ \left\{ 1 - \left( \frac{\mu_0 \mathcal{H}_z}{\sigma\Delta(0)} \right)^2 \right\} \frac{v}{(2\pi)^3} \int \frac{|\Delta(k)|}{E_k} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k} \right]^{1/2}, \quad (5.2) \\
 \frac{1}{\sigma} &= \frac{v}{(2\pi)^3} \int \left\{ 1 + \frac{1}{8} \left( \frac{\left\{ 1 - \left( \frac{\mu_0 \mathcal{H}_z}{\sigma\Delta(0)} \right)^2 \right\} \Delta(k)}{I(0) - I(k)} \right)^2 + \dots \right\} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}, \\
 E_k &= 2\sigma[I(0) - I(k)] \left\{ 1 + \frac{\left[ 1 - \left( \frac{\mu_0 \mathcal{H}_z}{\sigma\Delta(0)} \right)^2 \right] |\Delta(k)|}{I(0) - I(k)} \right\}^{1/2},
 \end{aligned}$$

а при  $\mu_0 \mathcal{H}_z \geq \sigma|\Delta(0)| - \Omega_1^{(0)}$  имеем точное решение:

$$\gamma_z = 1; \quad \eta_z = 0; \quad \beta = \beta^* = 0,$$

$$\frac{1}{\sigma} = \frac{v}{(2\pi)^3} \int \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k},$$

$$E_k = 2 \left\{ \mu_0 \mathcal{H}_z + \sigma[I(0) - |\Delta(0)| - I(k)] \right\}. \quad (5.3)$$

Легко видеть, что при  $\mu_0 \mathcal{H}_z = \sigma \Delta(0)$  выражения (5.2), (5.3) совпадают. в)  $\mathcal{H}_x \neq 0$ ;  $\mathcal{H}_y \neq 0$ ;  $\mathcal{H}_z = 0$ . Для этого случая получаем решение:  $\gamma_x = \frac{\mathcal{H}_x}{\mathcal{H}}$ ;  $\gamma_y = \frac{\mathcal{H}_y}{\mathcal{H}}$ ;  $\gamma_z = 0$ .

$$\beta_1 = \beta_1^*; \beta_1 = \frac{\sigma}{\sqrt{2}} \left\{ \frac{v}{(2\pi)^3} \int \frac{|\Delta(k)|}{E_k} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k} \right\}^{1/2},$$

$$\frac{1}{\sigma} = \frac{v}{(2\pi)^3} \int \left\{ 1 + \frac{1}{8} \left( \frac{\sigma \Delta(k)}{\mu_0 \mathcal{H} + \sigma [I(0) - I(k)]} \right)^2 + \dots \right\} \operatorname{cth} \frac{E_k}{2\vartheta} d\vec{k}, \quad (5.4)$$

$$E_k = 2 \left\{ \mu_0 \mathcal{H} + \sigma [I(0) - I(k)] \right\} \left\{ 1 + \frac{\sigma |\Delta(k)|}{\mu_0 \mathcal{H} + \sigma [I(0) - I(k)]} \right\}^{1/2}.$$

6. Как видно из полученных результатов, простой вакуум, при котором  $\langle b_f \rangle = \langle b_f^+ \rangle = 0$ , для анизотропного ферромагнетика имеет место лишь в некоторых случаях, а в других случаях необходимо учитывать более сложный вакуум, при котором  $\langle b_f \rangle \neq 0$ ;  $\langle b_f^+ \rangle \neq 0$ . Как мы видели в работе [2] для изотропного ферромагнетика, всегда имеет место вакуум, при котором  $\langle b_f \rangle = \langle b_f^+ \rangle = 0$ . Во всех случаях, когда  $\beta, \beta^* \neq 0$ , полученные уравнения для  $\sigma$  являются лишь первым приближением. Для получения следующего приближения надо учитывать второе приближение для  $\beta$  и  $\beta^*$ , что весьма усложняет расчеты. Следует заметить, что, как и следовало ожидать, поправки к первому приближению стремятся к нулю, когда  $\mathcal{H}$  стремится к бесконечности. Заметим далее, что уравнения (4.1), (4.2), (4.4) и (5.1), (5.2), (5.4) для  $\sigma$  при  $\vartheta = 0$  дают значение  $\sigma \leq 1$ . При этом значение  $\sigma = 1$  имеет место в случае точного вакуума. Полученные трансцендентные уравнения для  $\sigma$  годны для всего интервала температур и магнитных полей, что дает возможность определения  $\sigma$  в широком интервале температур и полей.

Представляет интерес сравнение полученных здесь результатов с результатами в методе приближенного вторичного квантования [3]. Отметим, во-первых, что имеется согласие обоих методов в отношении спектра для случаев 4а и 4б и некоторое сходство для случая 4в. (Случай  $\Delta(0) < 0$ , в работе [3] не был рассмотрен.) Далее, можно на этом основании ожидать согласия в выражении для намагниченности при низких температурах. Результаты будут заведомо расходиться при высоких температурах в области точки Кюри, где метод приближенного вторичного квантования просто не применим. В области низких температур можно ожидать разного поведения в критических полях ( $\mu_0 \mathcal{H} \sim \sigma \Delta(0)$ ).



## ЛИТЕРАТУРА

1. Н. Н. Боголюбов, С. В. Тябиков, ДАН СССР, **126**, 53, 1959.
2. Пу Фу-чо, С. В. Тябиков, Т. Шиклош, Acta Phys. Hung., **11**, 323, 1960.
3. С. В. Тябиков, Т. Шиклош, Acta Phys. Hung., **10**, 259, 1959. KFKI, Közl., **6**, 408, 1959.

## QUANTUM THEORY OF UNIAXIAL ANISOTROPIC FERROMAGNETIC CRYSTALS

By

S. V. TYABLIKOV and T. SIKLÓS

## Summary

The anisotropy of the magnetic properties of ferromagnetic crystals is treated as the result of anisotropy of the interactions between the electrons of the not-filled subshells. For the calculation of the magnetization as the function of the temperature and external magnetic field two-time advanced and retarded Green functions have been used, according to the method given in the papers [1], [2]. The results obtained are valid for all temperatures and external magnetic fields.

# THE RELATION BETWEEN LÖWDIN'S SPIN PROJECTION OPERATOR AND PRATT'S SPIN OPERATOR

By

F. BERENCZ

INSTITUT OF THEORETICAL PHYSICS, UNIVERSITY OF SZEGED, SZEGED

(Presented by A. Kónya — Received 23. III. 1960)

LÖWDIN has given a spin projection operator, which selects a state of multiplicity  $(2l + 1)$  when operating on a Slater determinant. PRATT has also derived an operator, which creates a state of definite multiplicity, when operating on a Slater determinant. It was verified that for constructing singlets, except for a constant factor, the two operators are identical.

PER-OLOV LÖWDIN [1] has given a spin projection operator, which, when operating on a determinant built up from spin orbitals of  $N$  antisymmetric particles having spin one half, like electrons or nucleons, selects a state of multiplicity  $(2l + 1)$ . This operator has the following form:

$${}^{(2l+1)}\mathbf{O} = \prod_k^{k \neq l} \frac{\mathbf{S}^2 - k(k+1)}{l(l+1) - k(k+1)}, \quad (1)$$

where  $\mathbf{S}$  means the spin operator; measuring the spin in units of  $\hbar$ ,  $l = \frac{N}{2}, \frac{N}{2} - 1, \frac{N}{2} - 2, \frac{N}{2} - 3, \dots, 0$  or  $\frac{1}{2}$  depending on whether  $N$  is even or odd; the smallest and the largest value of  $k$  is the minimal and maximal value of the resulting spin, respectively.

GEORGE W. PRATT [2] has also derived an operator, which is a function of the step-up and step-down operators pertaining to spin angular momentum and which creates a state of definite multiplicity too when operating on a single determinant of spatial and spin orbitals. PRATT applied his operator above all to find all orthogonal singlets for a  $2n$ -electron system. For constructing singlets the operator has the following form:

$${}^1\mathbf{O} = \sum_{k=0}^n (-1)^k \frac{(n-k)!}{n! k! (n+1)^{1/2}} (\mathbf{S}_A^- \mathbf{S}_B^+)^k. \quad (2)$$

This operator was generalized by PRATT, but we shall only consider the form of the operator as given in (2). To use the operator one must know that PRATT divided the electrons of the  $2n$  electron system into two sets: the collection of  $n$  electrons and orbitals will be termed set  $A$ , and the remaining  $n$  electrons



and  $n$  orbitals denoted as set  $B$ . The determinant which on application of  $\mathbf{10}$  gives the singlet states was constructed by PRATT by composing the product of the two determinants built up from spatial and spin orbitals of the electrons of set  $A$  and set  $B$ , each of which is to be in a state of maximum multiplicity, i. e.,  $s_{A,B} = \frac{n}{2}$ . Now one can already interpret the operator.  $\mathbf{S}_A^-$  and  $\mathbf{S}_A^+$  mean the so-called step-down and step-up operators which operate on part  $A$  and  $B$ , respectively, of the above mentioned determinant and

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_A^- &= \mathbf{S}_{1A}^- + \mathbf{S}_{2A}^- + \mathbf{S}_{3A}^- + \dots + \mathbf{S}_{nA}^-, \\ \mathbf{S}_B^+ &= \mathbf{S}_{1B}^+ + \mathbf{S}_{2B}^+ + \mathbf{S}_{3B}^+ + \dots + \mathbf{S}_{nB}^+, \end{aligned} \quad (3)$$

$k$  means, however, the number of spin reversals in  $A$  or  $B$ . The name step-up and step-down operator originates from the operator having the following effect:

$$\begin{aligned} \mathbf{S}^+ a &= 0 & \text{and} & & \mathbf{S}^- a &= \beta \\ \mathbf{S}^+ \beta &= a & & & \mathbf{S}^- \beta &= 0. \end{aligned} \quad (4)$$

In order to compare LÖWDIN's and PRATT's operators we will now investigate the effect of that operators on a Slater determinant built up from  $N = 2n$  spin-orbitals assuming that we are interested in states with  $\mathbf{S}_z = 0$ , i. e., having an equal number of  $a$  and  $\beta$  spins. Let us further assume that from the orbitals  $a_1, a_2, \dots, a_n, b_1, b_2, \dots, b_n$  the first  $n$  orbitals are occupied by particles with plus spin and the last  $n$  orbitals are occupied by particles with minus spin. The corresponding Slater determinant has then the following form:

$$(N!)^{-1} \det \{a_1 a, a_2 a, \dots, a_n a \mid b_1 \beta, b_2 \beta, \dots, b_n \beta\}, \quad (5)$$

which can be denoted by the abbreviated symbol

$$\{aa \dots a \mid \beta\beta \dots \beta\}. \quad (6)$$

To be in keeping with PRATT's "product" symbolism LÖWDIN introduced the following quantities to express the Slater determinants:

$$\begin{aligned} T_0 &= \{aa \dots a \mid \beta\beta \dots \beta\}, \\ T_1 &= \{(baa \dots) + (ab\alpha \dots) + \dots \mid (a\beta\beta \dots) + (\beta\alpha\beta \dots) + \dots\}, \\ T_2 &= \{(\beta\beta a \dots) + (\beta\alpha\beta \dots) + \dots \mid (aa\beta \dots) + (a\beta a \dots) + \dots\}, \\ &\vdots \\ T_n &= \{\beta\beta \dots \beta \mid aa \dots a\}. \end{aligned} \quad (7)$$

$T_0$  is evidently only the original Slater determinant;  $T_k$  is, however, the sum of all the different determinants obtained by  $k$  interchanges of the spin func-

tions between the two originally given groups  $A$  and  $B$  of the orbitals. Hence,  $T_k$  is a product of two factors, each of which containing  $\binom{n}{k}$  terms and  $T_k$  consists therefore of a sum of  $\binom{n}{k}^2$  determinants.

On the basis of the relation

$$S^2 = -\frac{1}{4}N(N-4) + \sum_{i < j} P_{ij}^\sigma, \tag{8}$$

where  $P_{ij}^\sigma$  means the permutation operator, LÖWDIN has proved that

$$S^2 T_k = (n-k+1)^2 T_{k-1} + [n(2k+1) - 2k^2] T_k + (k+1)^2 T_{k+1} \tag{9}$$

with the reservation  $T_{-1} = T_{m+1} = 0$ . Considering that this relation constitutes one of the most essential relations of the LÖWDIN's spin projection operator formalism it will not be uninteresting if one gives on the basis of the relation

$$S^2 = S^+ S^- + S_z^2 - S_z \tag{10}$$

a new proof, which may be found in the Appendix.

Since according to (1) the projection operator is a polynomial in  $S^2$ , we have proved with (9) that there exists an expansion of the form

$${}^{(2l+1)}\mathbf{O} T_0 = \sum_{k=0}^k C_k^{(l)} T_k, \tag{11}$$

in which the coefficients  $c_k^{(l)}$  may be determined by the recurrence formula

$$(n-k)^2 C_{k+1} + [n(2k+1) - 2k^2 - l(l+1)] C_k + k^2 C_{k-1} = 0 \tag{12}$$

obtained from the relation

$$S^2 \left( \sum_k C_k T_k \right) = l(l+1) \sum_k C_k T_k \tag{13}$$

on the basis of (9). According to the above mentioned LÖWDIN has obtained for the singlets the following relation:

$${}^1\mathbf{O} T_0 = C_0^{(0)} \sum_{k=0}^n (-1)^k \binom{n}{k}^{-1} T_k. \tag{14}$$

Let us now investigate the effect of the step-up and step-down operators ( $S_A^- S_B^+$ ) on the  $T_k$  introduced above. According to (4) the  $S_A^-$  operator reverses in the Slater determinant all the  $\alpha$  spins into  $\beta$  spins and the  $S_B^+$  operator reverses



in the Slater determinant all the  $\beta$  spins into  $\alpha$  spins and so according to (3)  $(\mathbf{S}_A^- \mathbf{S}_B^+) T_0$  gives the sum of all the different determinants obtained by one interchange of the spin functions between the two originally given groups  $A$  and  $B$  of the orbitals. But this is just the way  $T_1$  was introduced, therefore:

$$(\mathbf{S}_A^- \mathbf{S}_B^+) T_0 = T_1 = 1^2 T_1. \quad (15)$$

When  $(\mathbf{S}_A^- \mathbf{S}_B^+)$  operates in  $T_1$ , according to (3) and (4) we obtain before the line and after the line terms which contain two  $\beta$  respective two  $\alpha$  spins in all possible orders. Among the terms, however, owing to the structure of  $T_1$  before the line and after the line there are two equivalents, therefore

$$(\mathbf{S}_A^- \mathbf{S}_B^+) T_1 = 2^2 T_2. \quad (16)$$

Quite similarly

$$(\mathbf{S}_A^- \mathbf{S}_B^+) T_{k-1} = k^2 T_k. \quad (17)$$

From (15), (16) and (17)

$$T_1 = \frac{1}{1^2} (\mathbf{S}_A^- \mathbf{S}_B^+) T_0, \quad (18)$$

$$T_2 = \frac{1}{2^2} (\mathbf{S}_A^- \mathbf{S}_B^+) T_1 = \frac{1}{(2!)^2} (\mathbf{S}_A^- \mathbf{S}_B^+)^2 T_0, \quad (19)$$

⋮

$$T_k = \frac{1}{(k!)^2} (\mathbf{S}_A^- \mathbf{S}_B^+)^k T_0. \quad (20)$$

Let us substitute (20) into (14)

$$\begin{aligned} {}^1\mathbf{O} T_0 &= C_0^{(0)} \sum_{k=0}^n (-1)^k \binom{n}{k}^{-1} T_k = \\ &= C_0^{(0)} \sum_{k=0}^n (-1)^k \binom{n}{k}^{-1} \frac{1}{(k!)^2} (\mathbf{S}_A^- \mathbf{S}_B^+)^k T_0 = \\ &= C_0^{(0)} \sum_{k=0}^n (-1)^k \frac{(n-k)!}{n! k!} (\mathbf{S}_A^- \mathbf{S}_B^+)^k T_0. \end{aligned} \quad (21)$$

Comparing (21) with (14) we can verify that for constructing singlets LÖWDIN'S and PRATT'S operators are — except for a constant factor — identical.

## Appendix

## Theorem

$$\mathbf{S}^2 T_k = (n - k + 1)^2 T_{k-1} + [n(2k + 1) - 2k^2] T_k + (k + 1)^2 T_{k+1}. \quad (22)$$

For the proof we use the following relation:

$$\mathbf{S}^2 = \mathbf{S}^+ \mathbf{S}^- + \mathbf{S}_z^2 - \mathbf{S}_z. \quad (23)$$

As we have assumed that we are only interested in states with  $\mathbf{S}_z = 0$  we need, to prove (22), only investigate the effect of operator  $(\mathbf{S}^+ \mathbf{S}^-)$  on  $T_k$ .

In all of the terms in  $T_k$  there are before the perpendicular line between  $n$  elements  $k$  minus spins in all possible orders; the number of the terms is therefore  $\binom{n}{k}$ ; in all the terms after the perpendicular line there are  $k$  plus spins in all possible orders; here also the number of the terms is  $\binom{n}{k}$ . If we denote the permutation of the elements before the perpendicular line with  $\mathbf{P}_A$  and the permutation of the elements after the perpendicular line with  $\mathbf{P}_B$ , we can write  $T_k$  in the following form:

$$T_k = \left\{ \frac{\sum \mathbf{P}_A \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)^k} \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)^{n-k}}}{k! (n-k)!} \mid \frac{\sum \mathbf{P}_B \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)^k} \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)^{n-k}}}{k! (n-k)!} \right\}. \quad (24)$$

The summation is to be carried out over the permutations. As the permutation of the equivalent elements does not give new terms, one must divide by  $k! (n-k)!$ .

When forming  $(\mathbf{S}^+ \mathbf{S}^-) T_k$  the following relation must be taken into account

$$\begin{aligned} \mathbf{S}^+ &= \mathbf{S}_A^+ + \mathbf{S}_B^+, \\ \mathbf{S}^- &= \mathbf{S}_A^- + \mathbf{S}_B^-. \end{aligned} \quad (25)$$

Therefore

$$\begin{aligned} \mathbf{S}^- T_k &= \left\{ \frac{\sum \mathbf{P}_A \mathbf{S}_A^- \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)^k} \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)^{n-k}}}{k! (n-k)!} \mid \frac{\sum \mathbf{P}_B \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)^k} \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)^{n-k}}}{k! (n-k)!} \right\} + \\ &+ \left\{ \frac{\sum \mathbf{P}_A \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)^k} \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)^{n-k}}}{k! (n-k)!} \mid \frac{\sum \mathbf{P}_B \mathbf{S}_B^- \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)^k} \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)^{n-k}}}{k! (n-k)!} \right\}. \end{aligned} \quad (26)$$

But according to (3)

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_A^- \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)^k} \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)^{n-k}} &= \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)^k} \beta \alpha \dots \alpha + \\ &+ \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)^k} \alpha \beta \dots \alpha + \dots + \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)^k} \alpha \alpha \dots \beta, \end{aligned} \quad (27)$$



and so

$$\sum \mathbf{P}_A \mathbf{S}_A^- \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^k \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^{k-k} = (n-k) \sum \mathbf{P}_A \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^{k+1} \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^{n-k-1}. \quad (28)$$

Quite similarly

$$\sum \mathbf{P}_B \mathbf{S}_B^- \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^k \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^{n-k} = k \sum \mathbf{P}_B \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^{k-1} \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^{n-k+1}. \quad (29)$$

Let us substitute (28) and (29) into (26)

$$\begin{aligned} \mathbf{S}^- T_k = & \left\{ \frac{(n-h) \sum \mathbf{P}_A \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^{k+1} \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^{n-k-1}}{k!(n-k)!} \mid \frac{\sum \mathbf{P}_B \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^k \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^{n-k}}{k!(n-k)!} \right\} + \\ & + \left\{ \frac{\sum \mathbf{P}_A \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^k \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^{n-k}}{k!(n-k)!} \mid \frac{k \sum \mathbf{P}_B \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^{k-1} \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^{n-k+1}}{k!(n-k)!} \right\}. \end{aligned} \quad (30)$$

Let the step-up operator operate on both sides of the relation (30). We then obtain according to the above details the following result:

$$\begin{aligned} (\mathbf{S}^+ \mathbf{S}^-) T_k = & \left\{ \frac{(n-k)(k+1) \sum \mathbf{P}_A \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^k \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^{n-k}}{k!(n-k)!} \mid \frac{\sum \mathbf{P}_B \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^k \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^{n-k}}{k!(n-k)!} \right\} + \\ & + \left\{ \frac{k \sum \mathbf{P}_A \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^{k-1} \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^{n-k+1}}{k!(n-k)!} \mid \frac{k \sum \mathbf{P}_B \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^{k-1} \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^{n-k+1}}{k!(n-k)!} \right\} + \\ & + \left\{ \frac{(n-k) \sum \mathbf{P}_A \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^{k+1} \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^{n-k+1}}{k!(n-k)!} \mid \frac{(n-k) \sum \mathbf{P}_B \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^{k+1} \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^{n-k-1}}{k!(n-k)!} \right\} + \\ & + \left\{ \frac{\sum \mathbf{P}_A \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^k \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^{n-k}}{k!(n-k)!} \mid \frac{k(n-k+1) \sum \mathbf{P}_B \overbrace{(\alpha\alpha\dots\alpha)}^k \overbrace{(\beta\beta\dots\beta)}^{n-k}}{k!(n-k)!} \right\} = \\ = & (n-k)(k+1) T_k + (n-k+1)^2 T_{k+1} + (k+1)^2 T_{k+1} + \\ & + k(n-k+1) T_k. \end{aligned}$$

After reduction

$$(\mathbf{S}^+ \mathbf{S}^-) T_k = (n-k+1)^2 T_{k-1} + [n(2k+1) - 2k^2] T_k + (k+1)^2 T_{k+1}$$

is obtained; hereby the proof is complete.

REFERENCES

1. PER-OLOV LÖWDIN, Phys. Rev., **97**, 1509, 1955.
2. G. W. PRATT, Phys. Rev., **92**, 278, 1953.
3. H. EYRING, J. WALTER and G. KIMBALL, Quantum Chemistry, Wiley, New York, 1949, p. 237.

СВЯЗЬ МЕЖДУ СПИНОВЫМ ПРОЕКЦИОННЫМ ОПЕРАТОРОМ ЛЭВДИНА  
И СПИНОВЫМ ОПЕРАТОРОМ ПРАТТА

Ф. БЕРЕНЦ

Резюме

Спиновым проекционным оператором, введенным Лэвдиным, в применении к детерминанту Слэтера отбирается мультиплетное состояние  $(2l + 1)$ . Выведенный Праттом спиновый оператор в применении к детерминанту Слэтера также даёт состояние определённой мультиплетности. Установлено, что в отношении сингулетных состояний операторы Лэвдина и Пратта до константы совпадают.





# MESON-FERMION PV-INTERACTION IN THE THIRRING MODEL II.

By

G. PÓCSIK

INSTITUTE FOR THEORETICAL PHYSICS, ROLAND EÖTVÖS UNIVERSITY, BUDAPEST

(Presented by K. F. Novobátzky — Received 20. II. 1960)

The Thirring model completed by a meson-fermion PV-coupling is discussed from the point of view of renormalization. It is shown that in the perturbative approach the  $S$ -matrix contains unrenormalizable divergences coming from the PV-part. For the renormalization of the PV-part the (neutrino-like)  $n$ -fermion  $m$ -meson Green's functions of the PS(PV)-theory are examined in a non-perturbative approach. The propagators can be made finite by  $Z_2$  renormalization. After having calculated the exact Green's functions it is easily seen that just as in the S(V)-theory there are no physical effects. Our results which are exact in one dimension have only approximate validity in the real four-dimensional case. The approximation means omission of all the closed vacuum loops.

## § 1. Introduction

Recently we have discussed the PV-interaction of a selfcoupled massless spinor field and a neutral PS-meson field in one space dimension [1]. Assuming the usual expansion in the coupling constant of the PV-part, we have calculated exactly the field operators in the Heisenberg picture and found that the mesonic parts of the outgoing fermion waves (also in one dimension) are divergent.

To make finite the PV-part of the  $S$ -matrix, first of all the usual procedure [2] is considered (§2). It will be found that the diagrams of Møller-scattering with two, three, . . . meson exchanges are logarithmically divergent, thus the one-dimensional PS(PV)-theory cannot be renormalized in Dyson's sense. Hence, it is more accurate to examine the renormalization problem of the PS(PV)-theory by means of a non-perturbative approach. Such an approach is ARNOWITT—DESER's [3] and COOPER's [4] treatment based on functional integral formalism. (In [3] the nucleon, nucleon-meson, two-nucleon propagators were derived and discussed from the point of view of renormalization.) In §4, resp. §5 the renormalized  $n$ -fermion ( $M = 0$ ) resp.  $n$ -fermion ( $M = 0$ )  $m$ -meson propagator will be calculated by such methods (§3) immediately for the more general four-dimensional PS(PV)-theory instead of for one-dimension. In this case, we are supposing that there are no vacuum fluctuations.

As it will be seen, the one-fermion case ( $M = 0$ ) is identical with the corresponding S(V) one. Returning to one space dimension, the approximate results obtained for four dimensions are exactly true, because in one space



dimension the vacuum expectation value of the  $S$ -matrix of the external field problem can be taken to be one. Thus, it follows that in [1] there are no effects and their existence could be derived only from the inadequate assumption of the perturbative expansion.

## § 2. Unrenormalizability at perturbative approach

Firstly let us consider a PS(PS)-theory in one space dimension. To investigate all the possible primitive divergences, let us consider a certain primitively divergent Feynman graph in which the number of corners is  $C$ , the numbers of external, resp. internal fermion (meson) lines are  $F_e(M_e)$  resp.  $F_i = C - \frac{F_e}{2}$  ( $M_i = \frac{1}{2}(C - M_e)$ ). In order to estimate the degree of divergence we note

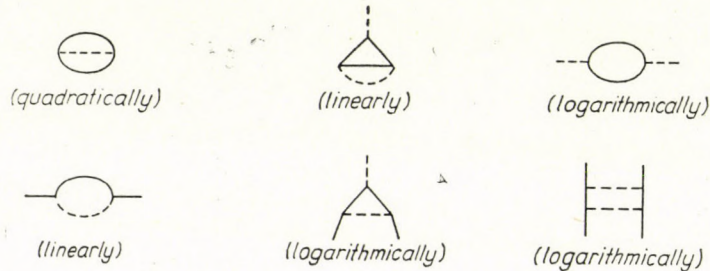


Fig. 1

the degree of the integrand in the contribution of the considered graph. We have  $2(F_i + M_i)$  integration variables, however, only  $2(F_i + M_i - C + 1)$  of them are independent, because of the  $2(C - 1)$  Dirac  $\delta$ 's. Turning to a polar coordinate system, this gives a contribution  $2(F_i + M_i - C + 1) - 1$  to the degree of divergence. Taking into consideration the contributions of  $\Delta_F$ 's and  $S_F$ 's, we get the degree of divergence as

$$1 - \frac{F_e}{2} - C. \quad (1)$$

It seems that the only primitively divergent diagram is that of the logarithmically diverging meson self-energy.

In PS(PV)-theory

$$(1) + 2M_i = 1 - \frac{F_e}{2} - M_e$$

gives the degree of divergence, where  $2M_i$  has come from the meson momentums appearing at the endpoints of the internal meson lines. The possible primitively divergent graphs are drawn in Fig. 1. We see immediately that the renormalizability is unattainable because of the Møller-skeletons (Fig. 2).

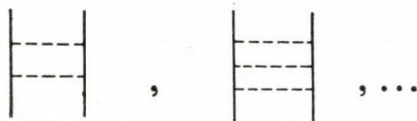


Fig. 2

From the expanded form of the  $S$ -matrix it can be shown that Furry's theorem is true. In §5 this will be verified also without any expansion.

### § 3. Preparation of the solution

We start with the physical Green's functions [2]

$$S'_{\alpha\beta}(x, y) = i \frac{\langle 0 | T(\psi_\alpha(x) \bar{\psi}_\beta(y) S) | 0 \rangle}{\langle 0 | S | 0 \rangle},$$

$$\Delta'(x, y) = i \frac{\langle 0 | T(\varphi(x) \varphi(y) S) | 0 \rangle}{\langle 0 | S | 0 \rangle}, \text{ etc.} \quad (2)$$

which determine all the experimental informations of the system. For their evaluation we use here their continuous (functional) integral representation. The calculation is performed in four dimensions for neutrino-like fermions neglecting the vacuum-loop effects. In this approximation, according to the general theory [5] the complete, radiatively corrected  $n$ -fermion  $m$ -meson Green's function is the following functional integral taken over all  $c$ -number meson fields  $\varphi$ :

$$S^{(n,m)}(1, \dots, n, 1', \dots, n'; '1, \dots, '2m) = (-1)^{\frac{n(n-1)}{2}} i^m N^{-1} \cdot \int \delta\varphi \varphi('1) \dots \varphi('2m) \text{Det}(S(i, j'; \varphi))_n \exp \left( -\frac{i}{2} \iint_{-\infty}^{\infty} \varphi(\xi) \cdot \Delta^{-1}(\xi - \xi') \varphi(\xi') d\xi d\xi' \right)$$

$$(j \equiv x_j, j' \equiv x'_j, 'j \equiv z_j), \quad (3)$$

where  $S(i, j'; \varphi)$  is the Green's function of the  $i$ -th bare fermion moving in an external field  $\varphi$

$$(-i\gamma_\mu \partial_\mu + iG\gamma_5 \gamma_\mu \partial_\mu \varphi(x))_i S(i, j'; \varphi) = \delta(i - j')$$



(we have used the same representations as in [3]) and

$$N = \int \delta\varphi \exp \left( -\frac{i}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \varphi(\xi) \Delta^{-1}(\xi - \xi') \varphi(\xi') d\xi d\xi' \right),$$

$$\Delta^{-1}(\xi - \xi') = \delta(\xi - \xi') (-\square + \mu^2).$$

The  $n \times n$  determinant is the bare  $n$ -fermion propagator in the external field  $\varphi$  except for the sign.

Now, we would like to deal with the indicated functional integration. The functional integration  $\int \delta\varphi \dots$  taken over  $\varphi$  is considered as the continuous limit of a multiple integral expanded over the discrete variables of a finite dimensional space [6]. For example,  $N$  is the continuous limit of the integral

$$\int_{-\infty}^{\infty} \dots \int_{-\infty}^{\infty} \exp \left( -\frac{1}{2} X A^{-1} X \right) dx_1 \dots dx_M \quad (= (2\pi)^{M/2} (\text{Det } A)^{1/2}),$$

where  $X$  means the vector  $(x_1, \dots, x_M)$  and  $A$  is a symmetrical constant matrix.

In the functional integral formalism and in the evaluation of (3), too, the relation

$$N^{-1} \int \delta\varphi \exp \left( -\frac{i}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \varphi(\xi) \Delta^{-1}(\xi - \xi') \varphi(\xi') d\xi d\xi' + \int_{-\infty}^{\infty} \varphi(\xi) f(\xi) d\xi \right) = \exp \left( -\frac{i}{2} \int_{-\infty}^{\infty} f(\xi) \Delta(\xi - \xi') f(\xi') d\xi d\xi' \right)$$

is very important. Here  $f(\xi)$  means a function containing some parameters, too. (4) can be considered as the continuous limit of the relation

$$\int_{-\infty}^{\infty} \dots \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-XAX + JX) dx_1 \dots dx_M = \pi^{M/2} (\text{Det } A)^{-1/2} \exp \left( \frac{1}{4} JA^{-1}J \right),$$

where  $J$  is a  $M$ -dimensional constant vector, or directly, it can be verified by the displacement

$$\varphi(\xi) = \varphi'(\xi) - i \int_{-\infty}^{\infty} \Delta(\xi - \eta) f(\eta) d\eta, \quad \delta\varphi = \delta\varphi',$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} \Delta^{-1}(\xi - \xi'') \Delta(\xi'' - \xi') d\xi'' = \delta(\xi - \xi').$$
(5)

(A method suitable for the calculation of a (3)-like functional integral is to find a transformation which eliminates the functional integration together with  $N^{-1}$  [7].)

(4) is true also in the case when  $f(\xi)$  contains some  $\gamma_5$ 's

$$\int_{-\infty}^{\infty} \varphi(\xi) f(\xi) d\xi = \sum_{i=1}^n \gamma_5^i C_i.$$

Namely, let us consider the matrix element ( $pq$ ) of the left-hand side of (4), take a diagonal representation for  $\gamma_5^i$  and apply (5) putting  $f \rightarrow f_{pq}$ , then, as we have

$$\begin{aligned} \left( \prod_{i=1}^n \exp(\gamma_5^i C_i) \right)_{pq} &= \delta_{pq} \prod_{i=1}^n (\cos C_i + (\gamma_5^i)_{pp} \sin C_i) = \\ &= \prod_{i=1}^n \exp((\gamma_5^i)_{pq} C_i) \quad ((\gamma_5^i)_{pp} = \pm i), \end{aligned}$$

get the matrix element ( $pq$ ) of the right-hand side.

Although this is quite enough for our purposes it is not uninteresting to verify (4) using the following more general conditions,

$$f(\xi) = \sum_{i=1}^n M_i f_i(\xi),$$

where the  $M_i$  means commutable numerical matrix and the exponential function containing the  $M_i$  is defined by its series. To verify our above statement, it is sufficient to prove that

$$\begin{aligned} \frac{1}{(2a-1)!} N^{-1} \int \delta\varphi \exp \left( -\frac{i}{2} \iint_{-\infty}^{\infty} \varphi(\xi) \Delta^{-1}(\xi - \xi') \varphi(\xi') d\xi d\xi' \right) \cdot \\ \cdot \left( \int_{-\infty}^{\infty} f(\xi) \varphi(\xi) d\xi \right)^{2a-1} = 0 \quad (a = 1, 2, \dots) \end{aligned} \quad (6)$$

and

$$\begin{aligned} \frac{1}{(2a)!} N^{-1} \int \delta\varphi \exp \left( -\frac{i}{2} \iint_{-\infty}^{\infty} \varphi(\xi) \Delta^{-1}(\xi - \xi') \varphi(\xi') d\xi d\xi' \right) \cdot \\ \cdot \left( \int_{-\infty}^{\infty} \varphi(\xi) f(\xi) d\xi \right)^{2a} = \frac{1}{a!} \left( -\frac{i}{2} \iint_{-\infty}^{\infty} f(\xi) \Delta(\xi - \xi') \cdot f(\xi') d\xi d\xi' \right)^a \quad (a = 0, 1, \dots). \end{aligned} \quad (7)$$



(6) will be shown in §5. Now, let us regard the left-hand side of (7) and the free  $\alpha$ -meson propagator

$$\Delta('1, \dots, '2\alpha) = \sum_P \Delta('1' - '2') \dots \Delta('2\alpha - 1' - '2\alpha'),$$

$\{j'\}$  denotes a certain permutation of  $\{j\}$  and  $P$  means all the distinguishable permutations [5]. We get the relation

$$\begin{aligned} & \frac{1}{(2\alpha)!} \int_{-\infty}^{\infty} \dots \int_{-\infty}^{\infty} dz_1 \dots dz_{2\alpha} f('1) \dots f('2\alpha) N^{-1} \int \delta\varphi \varphi('1) \dots \varphi('2\alpha) \cdot \\ & \exp \left( -\frac{i}{2} \iint_{-\infty}^{\infty} \varphi(\xi) \Delta^{-1}(\xi - \xi') \varphi(\xi') d\xi d\xi' \right) = \frac{1}{(2\alpha)! i^\alpha} \sum_P \int_{-\infty}^{\infty} \dots \int_{-\infty}^{\infty} dz_1 \dots dz_{2\alpha} \cdot \\ & \quad \cdot f('1) \dots f('2\alpha) \Delta('1' - '2') \dots \Delta('2\alpha - 1' - '2\alpha') = \\ & = \frac{1}{(2\alpha)! i^\alpha} \sum_P \int_{-\infty}^{\infty} \dots \int_{-\infty}^{\infty} dz_1 \dots dz_{2\alpha} \cdot f('1) \dots f('2\alpha) \Delta('1 - '2) \dots \Delta('2\alpha - 1 - '2\alpha). \end{aligned}$$

Here, we have used the commutability of  $f(i)$  and  $f(j)$ . As we have

$$\sum_P 1 = \frac{(2\alpha)!}{\alpha! 2^\alpha},$$

(7) is satisfied.

#### § 4. $n$ -fermion Green's function

In order to find out the complete  $n$ -fermion propagator, we must firstly determine the Green's function of the  $i$ -th bare fermion moving in the classical field  $\varphi$ . The condition  $M = 0$  assures that  $S(\varphi)$  departs from the free neutrino Green's function  $S_0$  in a Touschek transformation in  $\varphi$

$$\begin{aligned} S(i, j'; \varphi) &= S_0(i - j') \exp (G\gamma_5^i (\varphi(i) - \varphi(j'))) \\ & - i\gamma_\mu^i \partial_\mu^i S_0(i - j') = \delta(i - j'). \end{aligned} \tag{8}$$

Substituting (8) into (3), our  $n$ -particle propagator can be written as

$$\begin{aligned}
 S^{(n)}(1, \dots, n, 1', \dots, n') &= (-1)^{\frac{n(n-1)}{2}} N^{-1} \int \delta\varphi \sum_{(k_1, \dots, k_n)} P(k_1, \dots, k_n) \\
 S(1, k'_1; \varphi) \dots S(n, k'_n; \varphi) \exp &\left( -\frac{i}{2} \iint_{-\infty}^{\infty} \varphi(\xi) \Delta^{-1}(\xi - \xi') \varphi(\xi') d\xi d\xi' \right) = \\
 &= (-1)^{\frac{n(n-1)}{2}} \sum_{(k_1, \dots, k_n)} P(k_1, \dots, k_n) \prod_{s=1}^n S_0(s - k'_s) \cdot N^{-1} \int \delta\varphi \cdot \\
 \exp &\left( -\frac{i}{2} \iint_{-\infty}^{\infty} \varphi(\xi) \Delta^{-1}(\xi - \xi') \varphi(\xi') d\xi d\xi' + G \sum_{j=1}^n \gamma_5^j (\varphi(j) - \varphi(k'_j)) \right),
 \end{aligned}$$

where  $(k_1, \dots, k_n)$  means the summation over all the permutations  $(k'_1, \dots, k'_n)$  of  $(1', \dots, n')$  and  $P$  is the sign of the considered permutation. Our functional integral can be brought to the form (4), if we choose

$$f(\xi) = G \sum_{j=1}^n \gamma_5^j (\delta(j - \xi) - \delta(k'_j - \xi)).$$

Hence

$$\begin{aligned}
 \exp &\left( -\frac{i}{2} \iint_{-\infty}^{\infty} f(\xi) \Delta(\xi - \xi') f(\xi') d\xi d\xi' \right) = \exp \left( \frac{i}{2} G^2 \sum_{j,l=1}^n \gamma_5^j \gamma_5^l (\Delta(j-l) - \Delta(j - \right. \\
 &- k'_l) - \Delta(k'_j - l) + \Delta(k'_j - k'_l)) \Big) = Z_2^n \exp \left( iG^2 \sum_{j,l=1}^n \gamma_5^j \gamma_5^l \Delta(j - k'_l) \right) \cdot \\
 &\cdot \exp \left( -iG^2 \sum_{j>l=1}^n \gamma_5^j \gamma_5^l \cdot (\Delta(j-l) + \Delta(k'_j - k'_l)) \right),
 \end{aligned}$$

where  $Z_2$  is the renormalization constant

$$Z_2 = \exp(iG^2 \Delta(0)).$$

Finally, the complete, renormalized  $n$ -fermion propagator (one of the simplest form in the quantized field theory) has the following form

$$\begin{aligned}
 S_c^{(n)}(1, \dots, n, 1', \dots, n') &= (-1)^{\frac{n(n-1)}{2}} \exp \left( -iG^2 \sum_{j>l=1}^n \left( \gamma_5^j \gamma_5^l \Delta(j-l) \right) \right) \cdot \\
 &\cdot \sum_{(k_1, \dots, k_n)} P(k_1, \dots, k_n) \prod_{s=1}^n \left( S_0(s - k'_s) \exp \left( iG^2 \sum_{j=1}^n \gamma_5^j \gamma_5^s \Delta(j - k'_s) \right) \right) \cdot \\
 &\cdot \exp \left( -iG^2 \sum_{j>l=1}^n \gamma_5^j \gamma_5^l \Delta(k'_j - k'_l) \right).
 \end{aligned} \tag{9}$$



The exponential functions in  $II$  characterize the interaction of the particles, the others make perceptible the radiative corrections.

From (8) the case of the  $S(V)$ -theory can be got by  $\gamma_5^j \equiv -i$

$$S_c^{(n)}(1, \dots, n, 1', \dots, n') = (-1)^{\frac{n(n-1)}{2}} \text{Det}(S_0(i-j'))_n \exp \left\{ iG^2 \left( \sum_{j>l=1}^n (\Delta(j-l) + \Delta(j'-l')) - \sum_{j,l=1}^n \Delta(j-l) \right) \right\},$$

as  $k_j \rightarrow j$  could be put in the exponentials of (9).\*

We see that the one-particle propagator is equal to the corresponding  $S(V)$  one and it is constructed from free particle propagators

$$S'(x-x') = Z_2 S_0(x-x') \exp(-iG^2 \Delta(x-x')). \quad (10)$$

As can be seen,  $S_c^{(n)}$  has essential singularities caused by  $\Delta$ 's. The problem of definition of the propagators in momentum space has been examined in [3, 4]. Because of the appearing essential singularities, the Fourier transform is defined only in the one half of the complex  $G^2$ -plane in the usual manner. Above the critical  $G^2 = 0$  in the upper half of the  $G^2$ -plane it can be defined by an analytical continuation procedure.

Now, let us consider the case of one space dimension. First of all we must call to mind the omission of closed-loop effects. This condition is equivalent to  $\Delta^{(m)'}(1, \dots, 2m) = \Delta^{(m)}(1, \dots, 2m)$ , however, this is exactly satisfied in [1]. That is, according to [1] the  $S$ -matrix and  $\varphi$  are commutable, hence (2) is

$$\Delta'(x, y) = i \frac{\langle 0 | T(\varphi(x)\varphi(y)) S | 0 \rangle}{\langle 0 | S | 0 \rangle} = i \langle 0 | T(\varphi(x)\varphi(y)) | 0 \rangle = \Delta(x-y).$$

Consequently, it is exactly true that there are no physical effects at all, unlike the case shown by the perturbative approach [1].

### § 5. $n$ -fermion $m$ -meson Green's function

We start with the relation

$$N^{-1} \int \delta\varphi \varphi(1) \dots \varphi(2j-1) \exp \left( -\frac{i}{2} \iint_{-\infty}^{\infty} \varphi(\xi) \Delta^{-1}(\xi - \xi') \varphi(\xi') d\xi d\xi' \right) = 0 \quad (11)$$

\* The same result is obtained by S. OKUBO using CAIANIELLO's method. I thank him for sending me the preprint before publication.

which satisfies (6) and Furry's theorem. This relation is trivially true. For example, we can use EDWARDS'S method [8]. In this way we expand  $\varphi(\xi)$

$$\varphi(\xi) = \sum_{n=1}^{\infty} a_n \varphi_n(\xi),$$

where the complete function system  $\{\varphi_n(\xi)\}$  is normalized by

$$\frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \varphi_n(\xi) \Delta^{-1}(\xi - \xi') \varphi_m(\xi') d\xi d\xi' = \delta_{nm}.$$

Then, (11) will be

$$\begin{aligned} & \sum_{s, \dots, t=1}^{\infty} \varphi_s('1) \dots \varphi_t('2j-1) \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \dots \int_{-\infty}^{\infty} \prod_{n=1}^{\infty} da_n a_s \dots a_t \exp\left(-i \sum_{p=1}^{\infty} a_p^2\right)}{\prod_{p=1}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} da_p \exp(-ia_p^2)} = \\ & = \sum_{s, \dots, t=1}^{\infty} \varphi_s('1) \dots \varphi_t('2j-1) \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \dots \int_{-\infty}^{\infty} (da_k \exp(-ia_k^2)) \dots (da_l \exp(-ia_l^2)) a_s \dots a_t}{\prod_{p=k}^l \int_{-\infty}^{\infty} da_p \exp(-ia_p^2)}, \end{aligned}$$

where  $k, \dots, l$  means the different indices among  $s, \dots, t$ . This integral is zero, because the denominator is finite and in the nominator there is at least one odd function in the integrand.

Concerning the complete  $n$ -fermion  $m$ -meson propagator, from (3) it seems that

$$\begin{aligned} S^{(n,m)}(1, \dots, n, 1', \dots, n', '1, \dots, '2m) &= (-1)^{\frac{n(n-1)}{2}} i^m \sum_{(k_1, \dots, k_n)} P(k_1, \dots, k_n) \cdot \\ &\cdot \prod_{s=1}^n S_0(s - k'_s) \cdot N^{-1} \int \delta\varphi \varphi('1) \dots \varphi('2m) \exp\left(-\frac{i}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \varphi(\xi) \Delta^{-1}(\xi - \xi') \cdot \varphi(\xi') d\xi d\xi'\right. \\ &\left. + G \sum_{j=1}^n \gamma_5^j (\varphi(j) - \varphi(k'_j))\right). \end{aligned} \tag{12}$$

We can apply the symbolic displacement

$$\varphi(\xi) = \varphi'(\xi) - iG \sum_{l=1}^n \gamma_5^l (\Delta(\xi - l) - \Delta(\xi - k'_l)) \equiv \varphi'(\xi) - G\alpha(\xi). \tag{13}$$



Then, denoting by  $M(1, \dots, n, k'_1, \dots, k'_n; '1, \dots, '2m)$  the function

$$i^m N^{-1} \int \delta\varphi' \varphi('1) \dots \varphi('2m) \exp \left( -\frac{i}{2} \iint_{-\infty}^{\infty} \varphi'(\xi) \Delta^{-1}(\xi - \xi') \varphi'(\xi') d\xi d\xi' \right),$$

where naturally  $\varphi$  and  $\varphi'$  are related by (13), we can rewrite (12) in the form

$$\begin{aligned} S'^{(n,m)}(1, \dots, n, l', \dots, n'; '1, \dots, '2m) &= Z_2^n (-1)^{\frac{n(n-1)}{2}} \exp \left( -iG^2 \sum_{j>l=1}^n \gamma_5^j \gamma_5^l \Delta(j-l) \right) \cdot \\ &\cdot \sum_{(k_1, \dots, k_n)} P(k_1, \dots, k_n) \prod_{s=1}^n \left( S_0(s - k'_s) \exp \left( iG^2 \sum_{j=1}^n \gamma_5^j \gamma_5^s \Delta(j - k'_s) \right) \right) \cdot \quad (14) \\ &\cdot \exp \left( -iG^2 \sum_{j>l=1}^n \gamma_5^j \gamma_5^l \Delta(k'_j - k'_l) \right) M(1, \dots, n, k'_1, \dots, k'_n; '1, \dots, '2m). \end{aligned}$$

Here,  $M$  characterizes the meson-fermion interaction. Now, we see that  $M$  is a polynomial of degree  $m$  in  $G^2$ , its coefficients can be expressed by free many-meson Green's functions

$$\begin{aligned} M(1, \dots, '2m) &= i^m N^{-1} \int \delta\varphi' \{ \varphi('1) \dots \varphi('2m) + \dots + (-G)^j [ \alpha('1) \dots \\ &\dots \alpha('j) \varphi('j+1) \dots \varphi('2m) + \dots + \alpha('2m-j+1) \dots \alpha('2m) \varphi('1) \dots \\ &\dots \varphi('2m-j) ] + \dots + (-G)^{2m} \alpha('1) \dots \alpha('2m) \} \\ &\exp \left( -\frac{i}{2} \iint_{-\infty}^{\infty} \varphi'(\xi) \Delta^{-1}(\xi - \xi') \varphi'(\xi') d\xi d\xi' \right) = \\ &= \Delta('1, \dots, '2m) + \dots + (iG^2)^j [ \alpha('1) \dots \alpha('2j) \Delta('2j+1, \dots, '2m) + \dots + \\ &+ \alpha('2m-2j+1) \dots \alpha('2m) \Delta('1, \dots, '2m-2j) ] + \dots + (iG^2)^m \alpha('1) \dots \alpha('2m). \end{aligned}$$

In the  $S(V)$ -case from (14) we have

$$\begin{aligned} S'^{(n,m)}(1, \dots, n, l', \dots, n'; '1, \dots, '2m) &= \\ &= S'^{(n)}(1, \dots, n, l', \dots, n') M(1, \dots, n, l', \dots, n'; '1, \dots, '2m), \end{aligned}$$

where there is

$$\alpha('j) \equiv - \sum_{l=1}^n (\Delta('j-l) - \Delta('j-l'))$$

in  $M$ .

## REFERENCES

1. G. PÓCSIK, Acta Phys. Hung., **12**, 177, 1960.
2. H. BETHE, F. HOFFMANN and S. SCHWEBER, Mesons and Fields, V. I. Row, Peterson and Co., New York, 1955.
3. R. ARNOWITT and S. DESER, Phys. Rev., **100**, 349, 1955.
4. L. N. COOPER, Phys. Rev., **100**, 362, 1955.
5. P. T. MATTHEWS and A. SALAM, Nuovo Cim., **2**, 120, 1955.
6. S. F. EDWARDS, Nuovo Cim. Suppl., **4**, 711, 1956.  
E. H. LIEB, Proc. Roy. Soc. A, **241**, 339, 1957.
7. S. F. EDWARDS and R. E. PEIERLS, Proc. Roy. Soc. A, **224**, 24, 1954; S. F. EDWARDS, Proc. Roy. Soc. A, **228**, 411, 1954; **232**, 371, 377, 1955.
8. S. F. EDWARDS, Phil. Mag., **45**, 758, 1954.

PV-ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ МЕЗОНА И ФЕРМИОНА  
В МОДЕЛИ ТИРРИНГА II.

д-р. ПОЧИК

## Резюме

Модель Тирринга, расширенная мезонно-фермионной PV-связью, исследуется с точки зрения ренормализации. Допуская приближение теории возмущений, показывается, что в матрице S содержатся обусловленные Pv-частью расходимости, ренормализация которых невозможна. С целью ренормализации части модели, которая содержит производную связь, исследуются функции Грина теории  $Ps(Pv)l$ -фермионов (нейтриноподобных)  $m$ -мезонов в непертурбационном приближении. Ренормализацией  $Z_2$  пропагаторы могут становиться конечными. Определением точной функции Грина станет видным, что, как и в случае теории  $S(V)$ , физических эффектов не имеется. Полученные результаты для одномерного случая и в реальности действительны в приближении, в котором с эффектами вакуумной петли пренебрегается.





# INVESTIGATION OF THE $A^3\Pi$ STATE OF THE NH MOLECULE\*

By

I. Kovács

DEPARTMENT OF ATOMIC PHYSICS, POLYTECHNICAL UNIVERSITY, BUDAPEST

(Received: 2. IV. 1960)

The multiplet splittings observed in the  $A^3\Pi$  state of the NH molecule, which, as a function of the rotational quantum number, deviate from the formulas derived on the basis of VAN VLECK's theory, can well be interpreted — in good agreement with the measuring results — as the perturbation of the  $^3\Pi$  state by the  $^1\Pi$  state as well as by taking into account simultaneously the spin-spin interaction.

It was shown by a detailed investigation of the multiplet states that in several cases their behaviour deviates from the known term formulas derived on the basis of VAN VLECK's theory. Such deviations may be found for the  $^7\Sigma$  state occurring in the spectrum of the NH molecule [1], the  $^4\Pi$  state of the  $O_2^+$  molecule [2], and recently the  $A^3\Pi$  state of the NH molecule [3].

The deviations observed in the first case could be interpreted as the perturbation of a  $^7\Pi$  term lying not too far, by taking into account the terms omitted at the separation of the wave equation [4]. The anomalies shown in the  $^4\Pi$  state of the  $O_2^+$  molecule manifest themselves by the fact that the two middle multiplet components, as compared with the two extreme ones, are lying in a position other than required by the multiplet formula when taken as a function of the rotational quantum number. First, this anomaly was interpreted as the perturbation of the two  $^2\Pi$  terms; these perturbations were found by taking into consideration the spin-orbit interaction [5]. Later we have shown that the spin-spin interaction (not usually considered for  $\Pi$  terms) gives rise to the very same deviations as the perturbation of the  $^2\Pi$  terms, so that, eventually, the deviations observed empirically may be ascribed to the simultaneous effect of the two interactions referred to [6]. Essentially the same phenomenon may be found for the  $A^3\Pi$  term of the NH molecule; i. e. the middle component as a function of the rotational quantum number deviates from what is required by the known term formula. From the foregoing an obvious explanation for the observed anomaly may be found in the perturbation of a  $^1\Pi$  term transmitted by the spin-orbit interaction, and in the spin-spin interaction, respectively. For it seems probable that, just as in the case of the  $^4\Pi$  term, where the strongest perturbation on the two middle components of the  $^4\Pi$  term is caused by the  $^2\Pi$  terms, the same holds

\* A report of this work was given at the Seminary on Molecular Spectroscopy, University of Liège, Belgium, 25th May, 1960.



true for the  ${}^3\Pi$  term as well, where the middle components of the  ${}^3\Pi$  term are perturbed most by the  ${}^1\Pi$  terms. In his excellent work [3], DIXON, too, interpreted the empirically observed deviations by means of the spin-orbit interaction assuming, however, the perturbation of a  ${}^1\Sigma$  term instead of  ${}^1\Pi$ , with the result that later on he had to modify considerably the constant of multiplet splitting determined previously from the observed values.

It will be shown in the present work that the empirically observed deviations may be correctly interpreted in complete agreement with the experimental results as the perturbation caused by a  ${}^1\Pi$  term on the one hand, and as a spin-spin interaction on the other, without later making necessary any considerable modification of the splitting constant.

First, the deviations caused by the perturbation of the  ${}^1\Pi$  term are considered.

${}^3\Pi - {}^1\Pi$  perturbation. As is well known, multiplet  $\Pi$  terms are found mostly in the intermediate case between the HUND's case a) and b). For such cases the eigenfunctions are obtained by means of the eigenfunction in the HUND's case a) as follows:

$$\psi({}^3\Pi_N) = \sum_{\Omega=2}^0 S_{\Omega,N} \psi({}^3\Pi_{\Omega}), \quad (1)$$

where  $N = J + 1, J, J - 1$ . The explicit form of the elements of the transformation matrix  $S_{\Omega,N}$  is known [7]. By using (1) the elements of the perturbation matrix can be written

$$H_1({}^3\Pi_N {}^1\Pi_1) = \int \psi^*({}^3\Pi_N) H_1 \psi({}^1\Pi_1) d\tau, \quad (2)$$

where  $H_1$  is the operator of the spin-orbit interaction. In an earlier work [8] it has been demonstrated that in the HUND's case a) the  ${}^1\Pi$  terms perturb only the  ${}^3\Pi_1$  component and that the element of the perturbation matrix is independent of the rotational quantum number:

$$H_1({}^3\Pi_2 {}^1\Pi_1) = H_1({}^3\Pi_0 {}^1\Pi_1) = 0; \quad H_1({}^3\Pi_1 {}^1\Pi_1) = \xi. \quad (3)$$

Thus, on the basis of (1), (2), and (3) the matrix elements holding in the intermediate case are as follows:

$$H_1({}^3\Pi_N {}^1\Pi_1) = S_{1,N} H_1({}^3\Pi_1 {}^1\Pi_1). \quad (4)$$

By use of the perturbation theory of the non-degenerated systems we obtain with (4) for the perturbed energies

$$W'_N = W_N + aS_{1,N}^2, \quad (N = J+1, J-1), \quad (5)$$

where  $W_N$  represents the unperturbed term values described by the known term formula, whereas

$$a = \frac{|H_1(^3\Pi_1^1\Pi_1)|^2}{h\nu(^3\Pi^1\Pi)} \quad (6)$$

*Spin-Spin Interaction.* In the first approximation the spin-spin interaction supplies only terms, which according to KRAMERS [9] are

$$H_2 = \varepsilon [3\Sigma^2 - S(S+1)], \quad (7)$$

where  $S$  is the quantum number of the resulting spin momentum of the molecule (in our case  $S = 1$ ), whereas  $\Sigma$  is a projection of the resulting spin vector on the axis of the molecule ( $\Sigma = +1, 0, -1$ ), and  $\varepsilon$  a positive or negative constant. Thus in HUND's case a) the following values are given by (7) for the individual components of the  $^3\Pi$  term:

$$H_2(^3\Pi_2^3\Pi_2) = H_2(^3\Pi_0^3\Pi_0) = \varepsilon; \quad H_2(^3\Pi_1^3\Pi_1) = -2\varepsilon. \quad (8)$$

The energies for the intermediate case through (1) and (7) will be:

$$W'_N = \int \psi^*(^3\Pi_N) (H_0 + H_2) \psi(^3\Pi_N) d\tau, \quad (9)$$

where  $H_0$  is the Hamilton operator without the spin-spin interaction, whereas  $H_2$  is the operator of the spin-spin interaction. Be

$$\int \psi^*(^3\Pi_N) H_0 \psi(^3\Pi_N) d\tau = W_N, \quad (10)$$

where  $W_N$  is the energy described by the well known term formula. By using (1), (8), (9), and (10) we obtain

$$W'_N = W_N + \varepsilon [S_{2,N}^2 - 2S_{1,N}^2 + S_{0,N}^2] \quad (11)$$

and by making use of  $\sum_{\Omega} S_{\Omega,N}^2 = 1$ , we have

$$W'_N = W_N + \varepsilon - 3\varepsilon S_{1,N}^2. \quad (12)$$

Taking into account (5) and (12), the simultaneous effect of the perturbation of the  $^1\Pi$  term and the spin-spin interaction, the following may be written as a summary:

$$W'_N = W_N + \varepsilon + \beta S_{1,N}^2 \quad (N = J+1, J, J-1), \quad (13)$$

where  $\beta = a - 3\varepsilon$ .



*Application to the  $A^3\Pi$  term of the NO molecule.* Assuming  $^1\Sigma$  perturbation for the deviations found on the  $A^3\Pi$  term of the NH molecule, DIXON (op. c. formula (28)) obtained the following expressions neglecting the unimportant small terms:

$$W'_N = W_N + \frac{1}{2} \kappa_0 S_{0,N}^2, \quad (14)$$

where the explicit form of the transformation matrix elements is the following [7]:

$$S_{0,J+1} = \frac{\sqrt{J(J+1)} [u_3 - Y + 2]}{2 \sqrt{C_3(J)}}; \quad S_{0,J} = \frac{\sqrt{2J(J+1)}}{\sqrt{C_2(J)}}; \\ S_{0,J-1} = \frac{\sqrt{J(J+1)} [u_1 + Y - 2]}{2 \sqrt{C_1(J)}} \quad (15)$$

and

$$C_1(J) = (J-1)(J+2)Y(Y-4) + 2(2J+1)(J-1)J(J+1), \\ C_2(J) = Y(Y-4) + 4J(J+1), \\ C_3(J) = J(J+1)Y(Y-4) + 2(2J+1)J(J+1)(J+2), \\ u_1 = [Y(Y-4) + 4J^2]^{1/2}; \quad u_3 = [Y(Y-4) + 4(J+1)^2]^{1/2}, \quad (16)$$

where  $Y = A'/B = -2.127 \text{ cm}^{-1}$ . In addition, DIXON has suggested that in this case the interaction between the rotation and spin should be taken into account as well. Considering that the  $A^3\Pi$  term is invert ( $A < 0$ ), on turning to the term denotation (14) becomes.

$$v'_{00} + F'_1 = v_{00} + F_1 + \gamma(J-1) + \frac{1}{2} \kappa_0 S_{0,J-1}^2, \\ v'_{00} + F'_2 = v_{00} + F_2 - \gamma + \frac{1}{2} \kappa_0 S_{0,J}^2, \\ v'_{00} + F'_3 = v_{00} + F_3 - \gamma(J+2) + \frac{1}{2} \kappa_0 S_{0,J+1}^2, \quad (17)$$

where  $v'_{00} + F'_1 = W'_{J-1}$ ,  $v'_{00} + F'_2 = W'_J$ ,  $v'_{00} + F'_3 = W'_{J+1}$  and  $v_{00} + F_1 + \gamma(J-1) = W_{J-1}$ ,  $v_{00} + F_2 - \gamma = W_J$ ,  $v_{00} + F_3 - \gamma(J+2) = W_{J+1}$  and  $\gamma = 0.04 \text{ cm}^{-1}$ . Taking the mean values of (17) we have

$$v'_{00} + \frac{\sum F'_i}{3} = v_{00} + \frac{1}{6} \kappa_0 - \frac{4}{3} \gamma + \frac{\sum F_i}{3}. \quad (18)$$

As can be seen, the perturbation displaces the mean energy only by a constant value, and, since even this is dropped from the term differences, the determination of  $B$  and  $D$  is not affected by the perturbation. On the other hand, according to (18) the value  $\nu'_{00}$  determined by means of the observed values is in the following connection with  $\nu_{00}$ :

$$\nu'_{00} = \nu_{00} + \frac{1}{6}\alpha_0 - \frac{4}{3}\gamma = 29,776.77 \text{ cm}^{-1}. \quad (19)$$

DIXON, by taking the value  $F'_i$  as the observed values ( $F_{io}$ ) and the value  $F$  as the calculated values\* ( $F_{ic}$ ) set up the following expressions using the experimental data:

$$\begin{aligned} (F_{1o} - F_{1c}) - \frac{1}{2}\alpha_0 S_{0,J-1}^2 &= (\nu_{00} - \nu'_{00}) + \gamma(J-1) = -\frac{1}{6}\alpha_0 + \frac{4}{3}\gamma + \gamma(J+1), \\ (F_{2o} - F_{2c}) - \frac{1}{2}\alpha_0 S_{0,J}^2 &= (\nu_{00} - \nu'_{00}) - \gamma = -\frac{1}{6}\alpha_0 + \frac{4}{3}\gamma - \gamma, \quad (20) \\ (F_{3o} - F_{3c}) - \frac{1}{2}\alpha_0 S_{0,J+1}^2 &= (\nu_{00} - \nu'_{00}) - \gamma(J+2) = -\frac{1}{6}\alpha_0 + \frac{4}{3}\gamma - \gamma(J+2), \end{aligned}$$

where  $\alpha_0 = -1.6 \text{ cm}^{-1}$ . In Fig. 1a (20) is plotted against  $J$ , where, using the values of  $\alpha_0$  and  $\gamma$ , we have  $-\frac{1}{6}\alpha_0 + \frac{4}{3}\gamma = 0.31 \text{ cm}^{-1}$ . This means that the figure has to be displaced altogether towards the axis  $J$ , i. e. instead of  $\nu'_{00} = 29,776.76 \text{ cm}^{-1}$  the real  $\nu_{00} = 29,777.07 \text{ cm}^{-1}$ . After this the line corresponding to the intermediate component falls into its proper place, however, the whole figure is still not what would be expected. DIXON solved this problem by modifying the value  $A'_0 = -34.72 \text{ cm}^{-1}$  to  $A'_0 = -35.02 \text{ cm}^{-1}$  with the result that the figure was transformed corresponding to the expression found on the right side of (20), which is Fig. (6b) in his work. The reason for this modification is that the value  $A'_0$  was determined actually from the expression  $(F'_3 - F'_1) = 2B[Y(Y-4) + \frac{4}{3} + 4J(J+1)]^{1/2}$ , the left side of which in terms of the unperturbed values will be:

$$F'_3 - F'_1 = F_3 - F_1 - \gamma(2J+1) + \underbrace{\frac{1}{2}\alpha_0(S_{0,J+1}^2 - S_{0,J-1}^2)}_{\text{}}. \quad (21)$$

\* Here, empirically observed values are to be taken as the mean values of the measured  $\Lambda$ -doublet components, and calculated values are those that have been calculated with the already determined constants not taking the  $\Lambda$ -doubling into account.



The last term converges for low values of  $J$  to  $\frac{1}{2}\nu_0$ , and for higher values of  $J$  to zero (see Fig. 3). Thus, for the determination of  $A'_0$ , a subsequent correction is necessary.

Now let us consider our results. The expressions in (13) corresponding to (17) become

$$\begin{aligned} \nu'_{00} + F'_1 &= \nu_{00} + F_1 + \gamma(J-1) + \varepsilon + \beta S_{1,J-1}^2, \\ \nu'_{00} + F'_2 &= \nu_{00} + F_2 - \gamma + \varepsilon + \beta S_{1,J}^2, \\ \nu'_{00} + F'_3 &= \nu_{00} + F_3 - \gamma(J+2) + \varepsilon + \beta S_{1,J+1}^2, \end{aligned} \quad (22)$$

where

$$S_{1,J+1} = \frac{\sqrt{2}J(J+2)}{\sqrt{C_3(J)}}; \quad S_{1,J} = \frac{Y-2}{\sqrt{C_2(J)}}; \quad S_{1,J-1} = -\frac{\sqrt{2}(J^2-1)}{\sqrt{C_1(J)}}. \quad (23)$$

Taking again the arithmetical mean of (22)

$$\nu'_{00} + \frac{\sum F'_i}{3} = \nu_{00} + \varepsilon + \frac{\beta}{3} - \frac{4}{3}\gamma + \frac{\sum F_i}{3} \quad (24)$$

from which in a similar way

$$\nu'_{00} = \nu_{00} + \varepsilon + \frac{\beta}{3} - \frac{4}{3}\gamma = 29,776.76 \text{ cm}^{-1}, \quad (25)$$

hence the expression corresponding to (20) will be:

$$\begin{aligned} (F_{10} - F_{1c}) - \beta S_{1,J-1}^2 &= (\nu_{00} + \varepsilon - \nu'_{00}) + \gamma(J-1) = \frac{4}{3}\gamma - \frac{\beta}{3} + \gamma(J-1), \\ (F_{20} - F_{2c}) - \beta S_{1,J}^2 &= (\nu_{00} + \varepsilon - \nu'_{00}) - \gamma = \frac{4}{3}\gamma - \frac{\beta}{3} - \gamma, \\ (F_{30} - F_{3c}) - \beta S_{1,J+1}^2 &= (\nu_{00} + \varepsilon - \nu'_{00}) - \gamma(J+2) = \frac{4}{3}\gamma - \frac{\beta}{3} - \gamma(J+2). \end{aligned} \quad (26)$$

This can be seen in Fig. 1b, where the values  $\beta = 0.458 \text{ cm}^{-1}$  and  $\gamma = 0.04 \text{ cm}^{-1}$  result in  $\varepsilon' = \frac{4}{3}\gamma - \frac{\beta}{3} = -0.10 \text{ cm}^{-1}$ . This means that the whole figure is to be displaced upward by  $0.10 \text{ cm}^{-1}$  towards the  $J$ -axis i. e.  $\nu_{00} + \varepsilon = 29,776.66 \text{ cm}^{-1}$  instead of  $\nu'_{00} = 29,776.76 \text{ cm}^{-1}$  (the value  $\varepsilon$  cannot

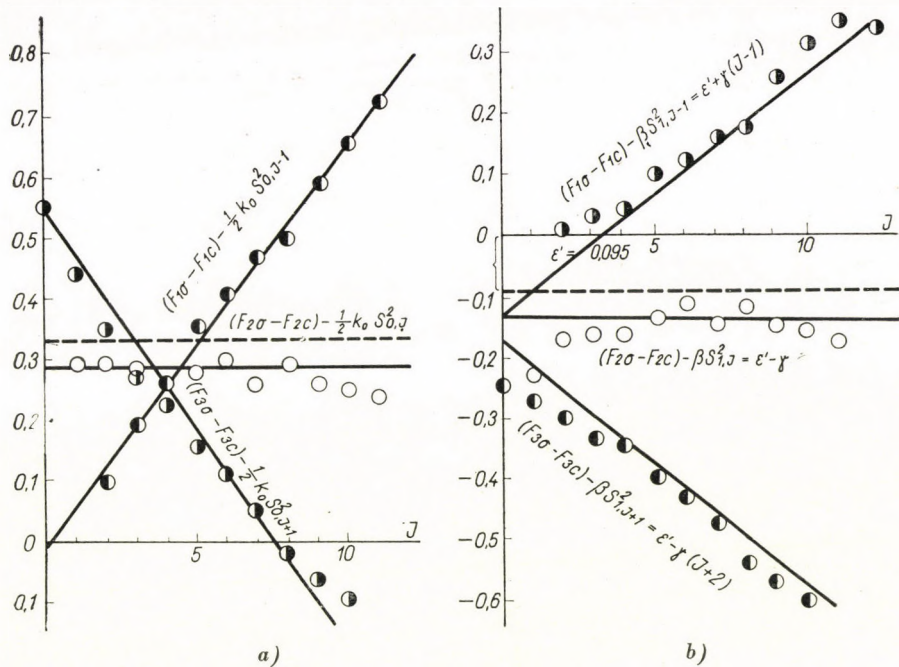


Fig. 1

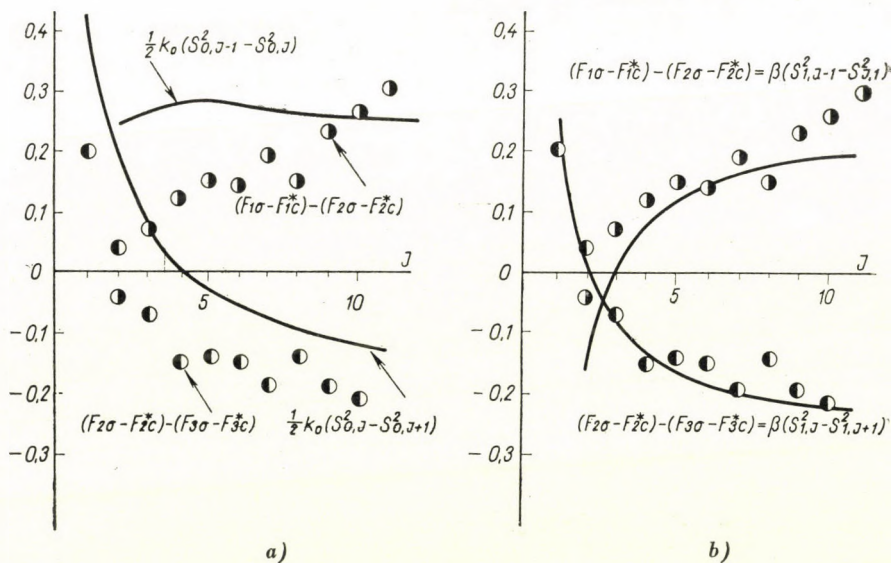


Fig. 2



alone be determined from this). Now, there is no need for a considerable modification of  $A'_0$ , since the directional tangent of (1b) is just 0.04 which is an already experimentally determined value of  $\gamma$ . All this can also be seen from the expression

$$F'_3 - F'_1 = F_3 - F_1 - \gamma(2J + 1) + \beta(S_{1,J+1}^2 - S_{1,J-1}^2), \quad (27)$$

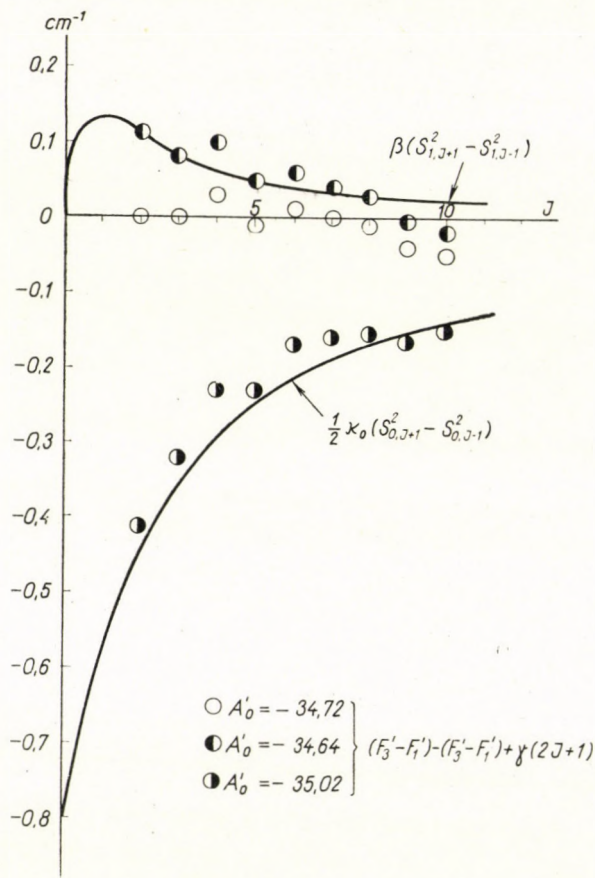


Fig. 3

where the last term converges alike to zero for  $J = 0$  and for high values of  $J$  (see Fig. 3). Since there is, however, a slight deviation for low values of  $J$ , a very small modification of  $A'_0$  is needed. By the value  $A_0 = -34.64 \text{ cm}^{-1}$  (instead of  $A'_0 = -34.72 \text{ cm}^{-1}$ )  $F_3$  and  $F_1$  are changed so as to satisfy (27) completely and at the same time in the Figures 1b and 2b even the smallest deviation for the lower values of  $J$  disappear.

Let us now consider the differences between the empirically observed and the calculated distances of the neighbouring components. Since the necessity of assuming the interaction between rotation and spin is obvious from what has been said above, it is appropriate to include it in the calculated value. Marked with an asterisk, they are

$$F_{1c}^* = F_{1c} + \gamma(J-1); \quad F_{2c}^* = F_{2c} - \gamma; \quad F_{3c}^* = F_{3c} - \gamma(J+2). \quad (28)$$

According to DIXON, it follows from (17)

$$\begin{aligned} (F_{10} - F_{20}) - (F_{1c}^* - F_{2c}^*) &= \frac{1}{2} \kappa_0 (S_{0,J-1}^2 - S_{0,J}^2), \\ (F_{20} - F_{30}) - (F_{2c}^* - F_{3c}^*) &= \frac{1}{2} \kappa_0 (S_{0,J}^2 - S_{0,J+1}^2). \end{aligned} \quad (29)$$

This is shown in Fig. 2a, where the circles indicate the left and the curves drawn in full the right side of the equation (29). If for the computation of the values  $F_{ic}^*$  the value  $A'_0$  — as modified by DIXON — is used, the circles will fall in the proximity of the curves drawn in full.

Let us form these expressions on the basis of (22):

$$\begin{aligned} (F_{10} - F_{20}) - (F_{1c}^* - F_{2c}^*) &= \beta(S_{1,J-1}^2 - S_{1,J}^2), \\ (F_{20} - F_{30}) - (F_{2c}^* - F_{3c}^*) &= \beta(S_{1,J}^2 - S_{1,J+1}^2). \end{aligned} \quad (30)$$

This can be seen in Fig. 2b. The agreement seems to be satisfactory, and the remaining small deviation when calculating with the value  $A'_0 = -34.64 \text{ cm}^{-1}$  disappears altogether.

Summarizing, it can be concluded that the deviation found on the  $A^3\Pi$  term of the NH molecule can be interpreted — in accordance with the experimental data — both as the perturbation caused by one (or more)  $^1\Pi$  term (such term — the  $C^1\Pi$  term — does exist in the term scheme of the NO molecule above the  $A^3\Pi$  term) taking into account at the same time the spin-spin interaction, and the perturbation caused by a  $^1\Sigma$  term.

In favour of the above interpretation two arguments may be advanced. Firstly, if the spin-spin interaction is taken into account for the interpretation of the  $\Lambda$ -doubling observed on the  $^3\Pi_0$  component in a case which is not diagonal either in  $\Lambda$  or in  $\Sigma$  ( $\Delta\Lambda = -\Delta\Sigma = \pm 2$ ), obviously it is to be taken into account in such cases, too, which are diagonal both in  $\Lambda$  and in  $\Sigma$ .

Secondly, if we are to interpret the deviations by means of the perturbation of a  $^1\Sigma$  term, the most appropriate term for this purpose is the term nearest in the term scheme, i. e. the  $b(^1\Sigma^+)$  term lying about  $10,000 \text{ cm}^{-1}$  below the  $A^3\Pi$  term. The theoretically calculated value of  $\kappa_0$  [8] for this case is



$$\alpha_0 = - \frac{|H_1({}^3\Pi_0 {}^1\Sigma_0^+)|^2}{h\nu({}^3\Pi {}^1\Sigma)} \sim - 0.2 \text{ cm}^{-1}, \quad (31)$$

a value eight times lower than that which would enable us to interpret the observed deviations by means of perturbation of a  ${}^1\Sigma$  term; the deviations in the mean value of the  $\Lambda$ -doubling remain everywhere below  $0.1 \text{ cm}^{-1}$ .

The author is deeply indebted to Prof. G. HERZBERG for suggesting the problem.

#### REFERENCES

1. T. E. NEVIN, Proc. Roy. Ir. Acad., **48A**, 1, 1942; **50A**, 123, 1945.
2. T. E. NEVIN, Phil. Trans. Roy. Soc. (London), **237**, 471, 1938.
3. R. N. DIXON, Can. Journ. Phys., **37**, 1171, 1959.
4. I. KOVÁCS, Proc. Roy. Ir. Acad., **60A**, 15, 1959.
5. A. BUDÓ and I. KOVÁCS, Act. Phys. Hung., **4**, 273, 1954.
6. I. KOVÁCS, Act. Phys. Hung., **10**, 255, 1959.
7. A. BUDÓ, Z. Physik, **105**, 579, 1937.
8. I. KOVÁCS, Can. Journ. Phys., **36**, 309, 1958.
9. H. A. KRAMERS, Z. Physik, **53**, 422; **53**, 429, 1929.

#### ИССЛЕДОВАНИЕ СОСТОЯНИЯ $A^3\Pi$ МОЛЕКУЛЫ NH

И. КОВАЧ

#### Резюме

Мультиплетные расщепления, наблюдаемые в состоянии  $A^3\Pi$  молекулы NH в зависимости от ротационного квантового числа отличаются от формул, выведенных на основе теории Ван Флека. Их интерпретация возможна возмущением, вызванным в состоянии  ${}^3\Pi$  состоянием  ${}^1\Pi$ , а также одновременным учетом спин-спинового взаимодействия, причем получается хорошее совпадение с результатами измерений.

## INVESTIGATIONS INTO THE ELEMENTARY PROCESSES OCCURRING IN ELECTRIC SPARK MACHINING

By

MARGIT TÓTH-BITSKEY and JENŐ PÓCZA

INSTITUTE OF EXPERIMENTAL PHYSICS, ROLAND EÖTVÖS UNIVERSITY, BUDAPEST

(Received 15. IV. 1959)

### Introduction

Electric spark discharges as non-stationary phenomena are interesting theoretically as well as from the practical point of view. By means of the adiabatic processes of immense energies concentrated in these discharges, states of extremely high energies can be attained in a small space. The process of erosion produced in this way is of practical importance in spark machining: Material will be removed from both electrodes by high-current spark discharges produced between electrodes a few hundredths of millimeters apart from each other. Opinions concerning the effects resulting in the erosion are widely differing. We briefly sketch the reasons for this divergence of opinions.

Bearing in mind that the discharge phenomena in liquid dielectrics are altogether rather unexplained it becomes clear that the necessity of using a fluid to cool the work piece and stop the discharge makes understanding of the processes occurring even more difficult.

The devices used commonly work by discharges of a capacitor (Fig. 1). The results gained by simple RC-circuit devices are, however, rather contradictory in consequence of the fact that the discharge of the RC-circuit is governed by the spark between the work pieces. The quantity of material removed shows an almost uncontrollable correlation with all the parameters involved.

Several workers use pulses of definite shape and under these fairly well-defined conditions determination of the dependence on individual parameters may become possible.

WILLIAMS [1] and others [2, 3] try to derive their conclusions from relations found between the dimensions of the craters which remain after the removal of the material eroded and the data of corresponding current pulses.



The current density on the surface in a strongly condensed discharge may become some  $10^6$  A/cm<sup>2</sup>. Current densities of this magnitude existing down to a depth of some hundredths of millimeters may produce a rather great voltage drop near the metal surface and consequently a very large electric field. According to this theory this large electric field would be responsible for the erosion of material. The force, necessary to remove the material, computed on these assumptions seems to be sufficient to overcome the tensile strength of material. LAZARENKO [4, 5] derives the erosion of material from electrodynamic forces.

ZOLOTIH [6] draws quite different conclusions. He used regularly repeated saw-tooth pulses and investigated the correlations between the quantity of eroded material and the frequency of pulses, the voltage etc. According to these investigations the process of erosion may be attributed to the heating effect of the discharges. The quantity of the material removed depends upon the frequency of the pulses and is proportional to the energy input in each frequency.

ZOLOTIH's ideas are supported by the theoretical investigations of LLEWELLYN-JOHNES [7] on spark discharges in gases. According to LLEWELLYN-JOHNES the heating effect of the energy input plays an important role in the mechanism of erosion.

According to MANDELSTAM and RAISKI [8] erosion is due to the explosive forces created by the heating effect.

### Experimental results

By a minor transformation of a magnetron voltage supply available in our laboratory we obtained pulses of 1  $\mu$ sec duration and a frequency of 100—500 c and peak-power of 500 kW. A suitably dimensioned transformer made in our workshop gave a square pulse-shaped working voltage of 200—400 Volts. By fixing the form of pulses, which were repeated by a small time-

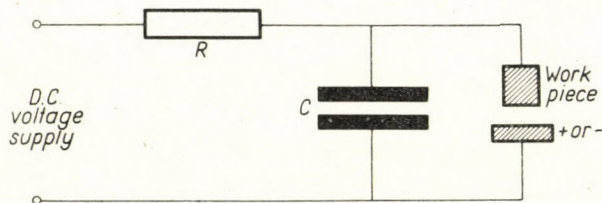


Fig. 1. Schematic diagram of circuit of spark cutting machine

filling factor, reproducible conditions could be obtained in the discharges and the dependence of the quantity of material eroded on the working parameters could be examined. The experimental cutting was carried out with an experi-

mental sparking machine put at our disposal by the state enterprise ÁGTI. The distance of the electrodes could be stabilized by magnetic control of the average current. With the aid of a microscope the distance of the electrodes in the case of a given discharge of desired voltage and current could be adjusted and the distance of the electrodes was kept constant by stabilising the current of the magnetic distance regulation.

With a change of distance the characteristic data of the discharge as well as the average current varied sensitively.

The voltage between the workpieces was measured by a vacuum-tube peak voltmeter, the current measurements were carried out with a similar instrument with induction-free resistance of  $0,1 \lambda$  in the circuit. The cuttings were generally carried out for 10 minutes in order to obtain the desired balancing accuracy (cca 1—2%), — during the time of cutting 30—100 mg material eroded.

From the results shown in Fig. 2a it can be seen that the quantity of eroded material is proportional to the pulse frequency and therefore the quantity of material eroded in one single pulse is nearly independent of the repeating frequency, in accordance with the investigations of LAZARENKO [5]. The processes which take place in the single pulses are quite independent of each other, which of course is quite natural with a pulse-filling ratio of  $10^{-3}$ .

In the group of curves in Fig. 2 the pulse-peak voltage was selected as parameter. The quantity of material eroded in one pulse varies with this peak voltage (Fig. 2b). The measurements were carried out with positive steel and negative brass electrodes. The average ratio of the anode and cathode diminution was

$$\Delta\gamma_k = \frac{\gamma_k}{\gamma_a} = 0,81 \pm 0,08 .$$

This ratio did not show any significant dependence on either the voltage or the frequency within the error of measurement.

By measuring simultaneously the peak-voltage and the current, i. e. the power input during the pulse, many data were obtained. Knowing the length of the pulses and their frequency, the energy of one pulse fed into the spark gap ( $W$ ) and the quantity of material eroded during one pulse ( $\gamma$ ) can be computed. The latter was measured as a function of energy for a given distance ( $15 \mu$ ) of steel anodes and brass cathodes and the results are shown in Fig. 3.

The measured data approximate with slight scattering one type of curve for each material. The curves in Fig. 3 can be well approximated using a graphical method by the formula

$$\gamma = a(W - b)^{1/2},$$



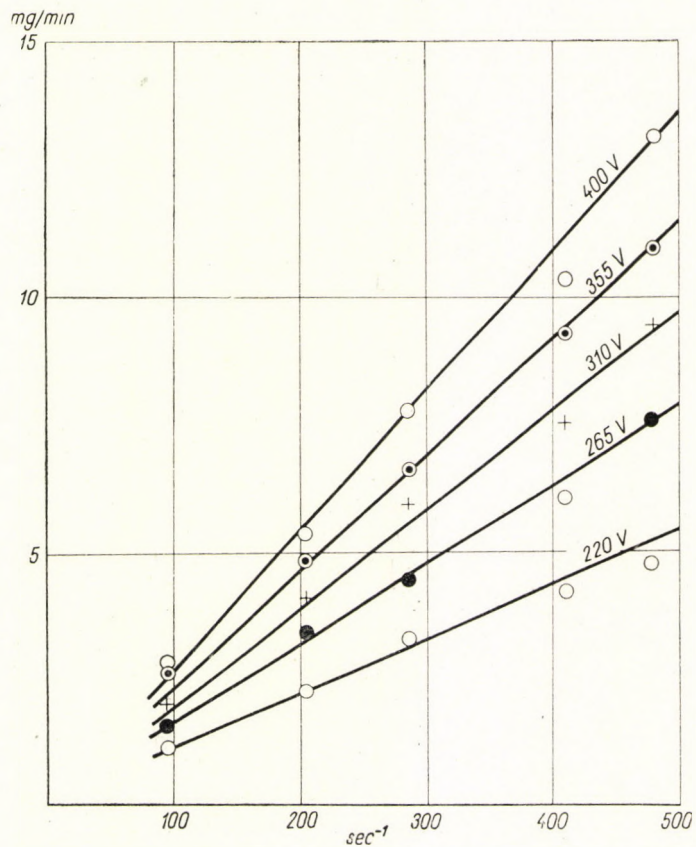


Fig. 2a. Eroded material as a function of frequency for various voltages (Steel anode)

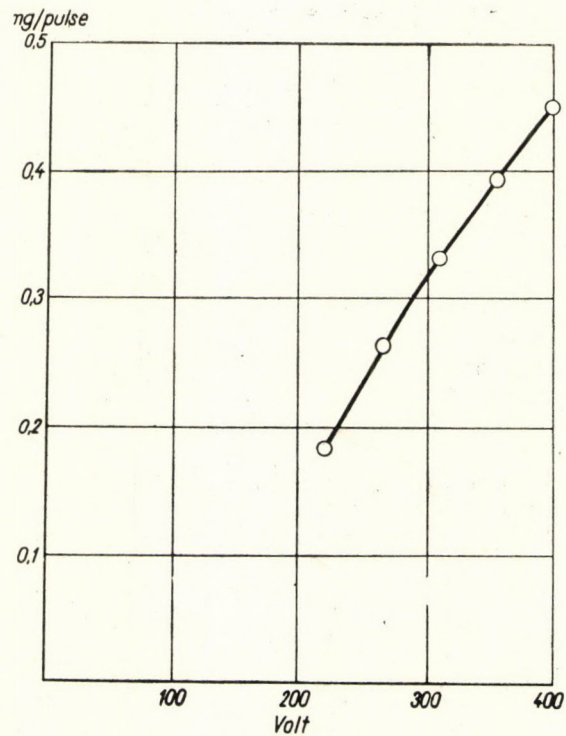


Fig. 2b. Material eroded in one pulse as a function of voltage

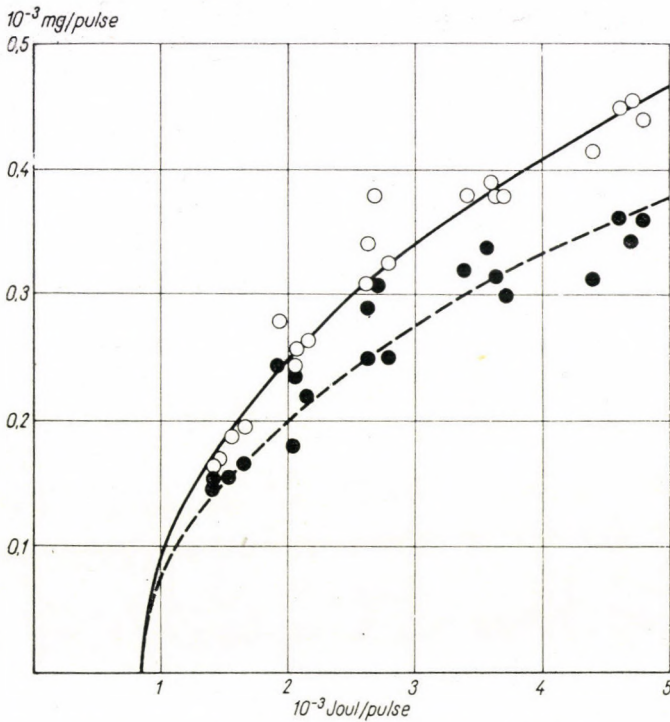


Fig. 3. Material eroded in one pulse as a function of energy induced in one pulse. (Dashed line: steel anode, dotted line: brass cathode)

where for the steel anode

$$a = 0,23 \pm 0,014 \cdot 10^{-3} \text{ mg}/(\text{millijoule})^{1/2}$$

$$b = 0,85 \pm 0,06 \text{ millijoule}$$

and for the brass cathode

$$a = 0,19 \pm 0,03 \cdot 10^{-3} \text{ mg}/(\text{millijoule})^{1/2},$$

$$b = 0,8 \pm 0,2 \text{ millijoule.}$$

### Discussion

Our results show that the erosion of the material is not determined primarily by the heating effect of the spark discharges, for in this case a proportionality between pulse energy and eroded material ought to have been observed.



In contrast to this, in our case of short pulses of  $1 \mu\text{s}$  duration effects of field strength or electrodynamical forces seem to be predominant.

It is interesting to compare our results with the extensive investigations of ZOLOTIH [6]. From his investigations it appears that the erosion is mainly caused by the heating effect.

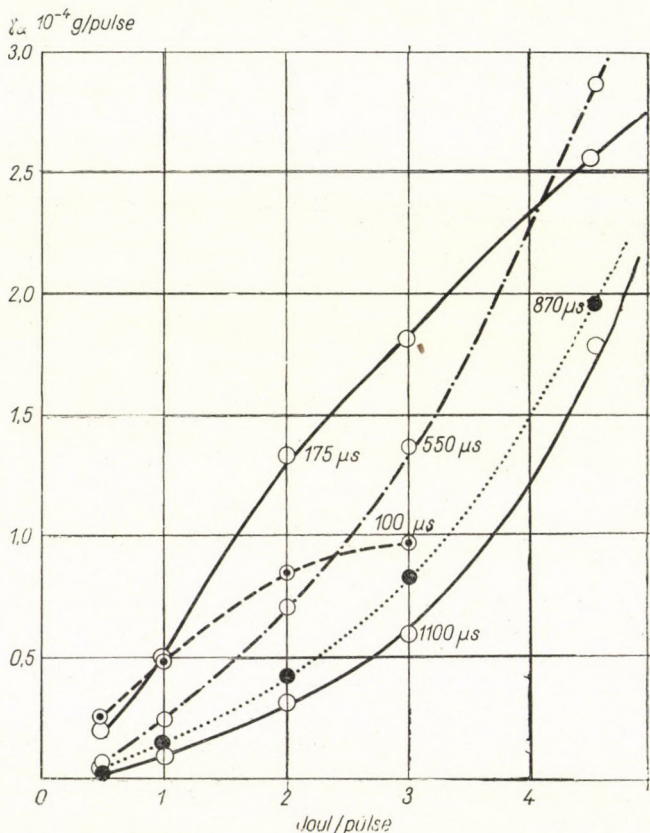


Fig. 4. Eroded material as a function of energy induced in one pulse after ZOLOTIH. (See [6], p. 47, fig. 5.)

Our Fig. 4 shows the connection between eroded material and pulse energy according to ZOLOTIH's data. The measurements correspond to various pulse frequencies and thus refer of course to various pulse lengths and are scattered over a large area. This cannot be due to an error of measurement. For given pulse lengths the measured points — except for the shortest pulses — can be doubtlessly connected by a straight line or approximated by a convex curve or parabola with an exponent higher than unity, but certainly not by one with an exponent below unity, as it is in our case. The shortest pulses give in this case also curves of a character similar to that of the curves found by us.

The large filling factor in the investigations of ZOLOTIH could have been instrumental in altering the pulse shape when varying the frequency. In this way it can be explained that from his measured data no unambiguous dependence of material on energy can be obtained, in contrast to our results. The long pulses of a large filling factor induce removal of material closely proportional to the energy according to the results of ZOLOTIH. This may be explained by the possibility of transition during the long pulse from spark discharge to arc discharge, where the heating effects can play an important role.

### Acknowledgements

This paper was presented by the authors at the Conference on Gaseous Discharges at Balatonvilágos on September 20, 1958.

The experiments were carried out at the request and with the financial support of ÁGTI (General Planning Inst. for Machines), Budapest.

The authors wish to express their thanks to Mr. P. BARNA, Mr. G. GROMA, Mrs. L. NAGY and Mr. L. TÓTH for their aid in the experimental work.

### REFERENCES

1. E. M. WILLIAMS, *Electrical Engineering*, **71**, 257, 1952.
2. M. BRUMA, *Schweitzer Archiv*, **22**, 18, 1956.
3. S. A. KIPNIS, *Fertigungstechnik*, **4**, 265, 1954.
4. Б. Р. Лазаренко и Н. И. Лазаренко, *Электроискровая обработка токопроводящих материалов*. Изд. АН. СССР. Москва, 1958.
5. Б. Р. Лазаренко, и Н. И. Лазаренко, *Физика искровой обработки металлов*. ЦБТИ МГЭП, 1946.
6. Б. Н. Золотых, *О физической природе электроискровой обработки металлов*. Эл. Обр. Мет. **1**, 38, 1957.
7. P. LEWELLYN-JONES, *Brit. Journal of Appl. Phys.*, **1**, 60, 1950.
8. С. Л. Манделштам и С. М. Райский, *О механизме электрической эрозии металлов*. Известия АН. СССР. серия физическая, XIII. **5**, 549, 1949.





# PHASE SHIFTS OF HIGH-ENERGY DIRAC AND KLEIN—GORDON PARTICLES

By

T. TIETZ

DEPARTMENT OF THEORETICAL PHYSICS, UNIVERSITY ŁÓDŹ, ŁÓDŹ, POLAND

(Received 6. XII. 1959)

The phase shifts method was first applied to the Dirac equation by MOTT [1] in calculating the scattering of fast electrons. Later the problem of calculating the scattering of high-energy relativistic particles has been discussed by PARZEN [2]. In this paper we calculate by means of a simple method phase shifts of high-energy Dirac and Klein—Gordon particles. In our treatment we shall assume that the incident particle is extrem relativistic, so that the energy  $E$  of the incident particle is greater than the mass  $m$  of the Dirac or Klein—Gordon particle. In relativistic units  $h = c = 1$  and the Dirac equations for the radial parts  $f_l(r)/r$  and  $g_l(r)/r$  of the wave function can be written:

$$\frac{df_l}{dr} = -\frac{(l+1)}{r}f_l + (E-V)g_l, \quad (1a)$$

$$\frac{dg_l}{dr} = \frac{(l+1)}{r}g_l - (E-V)f_l. \quad (1b)$$

The corresponding equations for zero potential we obtain when we put  $V = 0$ , instead of  $f_l$  we write  $u_l$  and instead of  $g_l$  we put  $w_l$ .

Taking into consideration eq. (1a) and (1b) as also the corresponding equations for  $V = 0$  we obtain after simple calculations and integration over  $(0, \infty)$  the following relations

$$w_l f_l - u_l g_l \Big|_0^\infty = -\int_0^\infty V(g_l w_l + f_l u_l) dr. \quad (2)$$

Using equation (1a) and (1b) for  $V = 0$  we obtain for  $u_l$  and  $w_l$  after differentiation and corresponding elimination the following differential equations:

$$\frac{d^2 u_l}{dr^2} + \left[ E^2 - \frac{(l+1)(l+2)}{r^2} \right] u_l = 0, \quad (3a)$$

$$\frac{d^2 w_l}{dr^2} + \left[ E^2 - \frac{l(l+1)}{r^2} \right] w_l = 0. \quad (3b)$$



The asymptotic forms of  $u_l$  and  $w_l$  for large  $r$  are then

$$u_l \rightarrow \cos \left[ Er - \frac{1}{2} (l+2)\pi \right], \quad (4a)$$

$$w_l \rightarrow \cos \left[ Er - \frac{1}{2} (l+1)\pi \right]. \quad (4b)$$

The asymptotic forms of  $f_l$  and  $g_l$  for large  $r$  according to equations (4a) and (4b) are:

$$f_l \rightarrow \cos \left[ Er - \frac{1}{2} (l+2)\pi + \delta_l \right], \quad (5a)$$

$$g_l \rightarrow \cos \left[ Er - \frac{1}{2} (l+1)\pi + \delta_l \right]. \quad (5b)$$

In these equations  $\delta_l$  denotes the phase shifts for Dirac equations. Substituting the asymptotic formulas for  $u_l$  and  $w_l$  as also the asymptotic formulas for  $f_l$  and  $g_l$  in equation (2) and taking into consideration that the lower limit for  $r = 0$  vanishes we have for the phase shifts  $\delta_l$  the exact expression:

$$\sin \delta_l = - \int_0^{\infty} V(g_l w_l + f_l u_l) dr. \quad (6)$$

In order to calculate the phase shifts  $\delta_l$  for the Dirac equations by help of eq. (6) we must know  $f_l$  and  $g_l$ , since  $u_l$  and  $w_l$  are known:

$$u_l = \sqrt{\frac{\pi E r}{2}} J_{l+1/2}(Er), \quad (7a)$$

$$w_l = \sqrt{\frac{\pi E r}{2}} J_{l+1/2}(Er). \quad (7b)$$

The symbol  $J$  denotes the Bessel function.  $u_l$  and  $w_l$  are the solutions of equations (3a) and (3b) and have the required asymptotic form for large  $r$  given by equations (4a) and (4b).

The Klein—Gordon equation, in case we assume that the incident particle has an energy  $E$  much greater than the mass  $m$  of the Klein—Gordon particle, is given by the following expression:

$$\frac{d^2 v_l}{dr^2} + \left[ E^2 - \frac{l(l+1)}{r^2} - 2EV + V^2 \right] v_l = 0. \quad (8)$$

In case the potential has no singularity at  $r = 0$  and has a short range the asymptotic form of  $v_l$  for large  $r$  is

$$v_l \rightarrow \cos \left[ Er - \frac{1}{2}(l+1) + \eta_l \right], \quad (9)$$

where  $\eta_1$  is the asymptotic phase shift for the Klein—Gordon equation for high energy. Using equations (3a) and (3b) as also equation (8), and the formulas for the asymptotic behaviour of  $u_l$ ,  $w_l$  and  $v_l$  given by equations (4a), (4b) and (9) we obtain after simple calculations the following expression:

$$\sin \eta_l + \sin \eta_{l+1} = -\frac{1}{E} \int_0^{\infty} (2EV - V^2)(w_l v_l + u_l v_{l+1}) dr. \quad (10)$$

In the case when the energy  $E$  of the incident particle is high we can replace in formula (6)  $g_l$  by  $w_l$  and  $f_l$  by  $u_l$ . In this case formula (6) takes the form

$$\sin \delta_l = -\int_0^{\infty} V(w_l^2 + u_l^2) dr. \quad (11)$$

This formula allows us to calculate analytically the phase shifts  $\delta_l$  of Dirac equations, since  $u_l$  and  $w_l$  are known and given by equations (7a) and (7b). For high energy we can in formula (10) replace  $v_l$  by  $w_l$  and  $v_{l+1}$  by  $u_l$ . In this case we obtain:

$$\sin \eta_l + \sin \eta_{l+1} = -\frac{1}{E} \int_0^{\infty} (2EV - V^2)(w_l^2 + u_l^2) dr. \quad (12)$$

Comparing equation (11) with equation (12) we obtain the following relation

$$\sin \eta_l + \sin \eta_{l+1} = 2 \sin \delta_l + \frac{1}{E} \int_0^{\infty} V^2(w_l^2 + u_l^2) dr. \quad (13)$$

For very high energy we can in formula (10) replace  $v_l$  by  $w_l$  and  $w_{l+1}$  by  $u_l$ , as also we can neglect the term  $V^2$  in comparison with the term  $2EV$ . After these simplifications using also equation (11) we obtain the following relation:

$$\delta_l = \frac{\eta_l + \eta_{l+1}}{2}. \quad (14)$$



The expression given by equation (14) was for the first time obtained by PARZEN [3]. The simplifications which lead from the exact formulas (6) and (10) to the approximate formulas (13) and (14) are of the same type as those made by BORN. The derivation of the formulas (6), (10) and (14) is new and shows for which energies  $E$  of the incident particle formula (14) is valid. (Formula (13) is a new relation between Dirac phase shifts and Klein—Gordon phase shifts.) From formula (13) we obtain as a special case the PARZEN expression.

I wish to thank Professor P. GOMBÁS for the the kind hospitality extended to me at the Institute of Physics, Budapest, where this paper was written.

#### REFERENCES

1. N. F. MOTT, Proc. Roy. Soc., A. **124**, 426, 1949.
2. G. PARZEN, Phys. Rev., **81**, 808, 1951; Phys. Rev., **104**, 835, 1956.
3. See the last mentioned paper in reference [2].

# EINE EINFACHE ANNÄHERUNG DER ELEKTRONENWECHSELWIRKUNGSINTEGRALE DER QUANTENCHEMIE

Von

T. SZONDY

FORSCHUNGSGRUPPE FÜR THEORETISCHE PHYSIK DER UNGARISCHEN AKADEMIE DER WISSENSCHAFTEN  
UND ORGANISCH-CHEMISCHES INSTITUT DER R. EÖTVÖS UNIVERSITÄT, BUDAPEST

(Eingegangen: 28. III. 1960)

Für die Auswertung von Integralen vom Typ  $I = \int U(r, s) \cdot V(t) \cdot d\tau$ , die bei quantenmechanischen Untersuchungen molekularer Gebilde auftreten ( $r$  und  $s$  bezeichnen die Koordinaten von zwei Elektronen des Systems,  $t$  bedeutet ihren Abstand und  $d\tau$  das Volumenelement im sechsdimensionalen Konfigurationsraum) kann die folgende Methode dienen.

Man kann das Integral  $I$  formal als die potentielle Energie zweier Teilchen auffassen, deren Verteilungsfunktion  $|\psi(r, s)|^2 \equiv U(r, s)$  ist, und zwischen welchen eine Wechselwirkungskraft mit dem Potential  $V(t)$  wirkt. Es bedeute  $C(t) \cdot dt$  die Wahrscheinlichkeit, dass in dem durch die Verteilungsfunktion  $U(r, s)$  beschriebenen System der Abstand der Teilchen einen zwischen  $t$  und  $t + dt$  liegenden Wert hat. Der Wert des Integrals  $I$  kann auch mit Hilfe von  $C(t)$  ausgedrückt werden, da die potentielle Energie der Teilchen neben  $V(t)$  nur eine Funktion des Teilchenabstandes ist:

$$I = \int U(r, s) \cdot V(t) \cdot d\tau = \int_0^{\infty} C(t) \cdot V(t) \cdot dt. \quad (1)$$

Da die Form der Funktion  $C(t)$  nur von  $U$  nicht aber von  $V$  abhängt, kann man zu jeder Funktion  $U$  eindeutig eine Funktion  $C(t)$  zuordnen, und damit die Berechnung des Integrals  $I$  auf die Berechnung eines eindimensionalen Integrals zurückführen.

Die Gleichung (1) kann auch ohne Ausnutzung der anschaulichen Interpretation des Integrals  $I$  folgenderweise abgeleitet werden.

Es sei gegeben eine Funktion  $U = U(x_1, x_2, \dots, x_n)$  der beliebig vielen Variablen  $x_1, x_2, \dots, x_n$ , die in einen mit  $T$  bezeichneten Gebiete der Variablen definiert ist und die dieselben Bedingungen erfüllt wie das Quadrat des Absolutwertes einer quantenmechanischen Wellenfunktion. Weiter sei eine Funktion  $t = t(x_1, x_2, \dots, x_n)$  im ganzen Gebiete  $T$  differentierbar, und grad.  $t$  im ganzen Gebiete von Null verschieden. Der Maximal- bzw. Minimalwert der Funktion  $t$  sei innerhalb des Gebietes  $T$ ,  $B$  bzw.  $A$ .



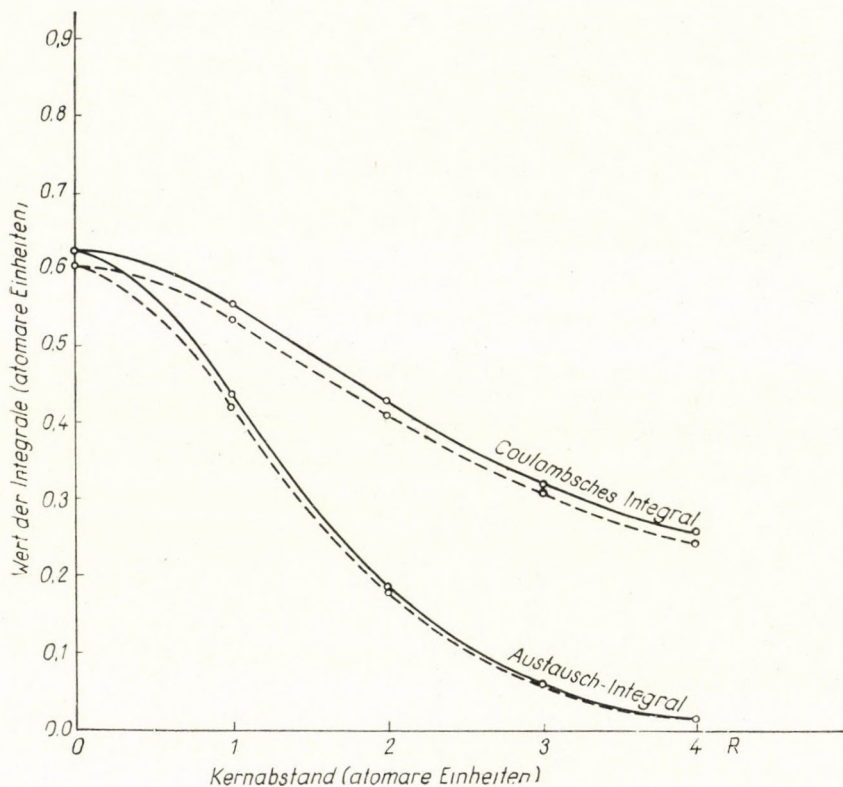


Fig. 1. Das Coulomb- und Austauschintegral zwischen zwei Wasserstoff 1s-Eigenfunktionen als Funktion des Kernabstandes. (Ausgezogene Kurven: die genauen Werte. Gestrichelte Kurven: die Näherungswerte berechnet mit  $f = a_1 e^{-a_2 t} \cdot t^{a_3}$ )

Teilen wir das Intervall  $(A, B)$  durch die Punkte  $A = t_0 < t_1 < \dots < t_{i-1} < t_i < t_{i+1} < \dots < t_r = B$  in  $r$  Teile und bezeichnen wir das Teilgebiet von  $T$ , dessen Punkte  $P_i = \{x_1, x_2, \dots, x_n\}$  die Bedingung

$$t_{i-1} \leq t(P_i) \leq t_i, \quad t_i - t_{i-1} \equiv \Delta t_i \quad (2)$$

erfüllen, mit  $T_i$ . Definieren wir eine mit  $C(t)$  bezeichnete Funktion als den Grenzwert

$$C(t_i) = \lim_{\Delta t_i \rightarrow 0} \frac{\int_{(T_i)} U \cdot dx_1 \dots dx_n}{\Delta t_i} \quad (3)$$

Wenn man beide Seiten der Gleichung (3) mit  $V(t_i) \cdot \Delta t_i$  multipliziert, über  $i$  summiert, und in Betracht zieht dass, wenn  $\Delta t_i$  genug klein ist,  $V(t_i)$  innerhalb  $T_i$  als konstant angesehen werden kann und deshalb die Multiplika-

tion mit  $V(t_i)$  mit der Integration nach  $x_1, \dots, x_n$  vertauschbar ist, so bekommt man folgende Gleichung:

$$\int U \cdot V(t) dx_1 \cdot dx_2 \dots dx_n = \int_A^B C(t) V(t) dt. \quad (4)$$

Ein Vergleich mit Gl. (1) zeigt, dass diese ein spezieller Fall der Gl. (4) ist.

Wenn grad.  $t$  im ganzen Gebiete  $T$  endlich und von Null verschieden ist, so geht  $T_i$  mit derselben Ordnung gegen Null wie  $\Delta t_i$ , und da  $\int U \cdot dx_1 dx_2 \dots dx_n$  endlich ist, ist der Grenzwert auf der rechten Seite von Gl. (3) endlich.

Wenn man mit der geschilderten Methode konkrete Rechnungen durchführen will, so sucht man die Funktion  $C(t)$  annähernd in Form einer — durch qualitative Diskussion des Problems zweckmässig gewählten — Näherungsfunktion  $f(t, a_1 a_2, \dots, a_n)$  mit den noch unbestimmten Parametern  $a_1, a_2, \dots, a_n$ . Um die optimalen Werte der Parameter zu ermitteln, schreibt man statt  $C(t)$  die Näherungsfunktion  $f$  in die Gl. (1) und wertet die Integrale für  $n$  solche verschiedene, einfache Funktionen  $V(t)$  aus, mit welchen beide Seiten der Gleichung leicht zu berechnen sind. Da die positiven geradzahligigen Potenzen von  $t$  relativ einfache Funktionen sind, kann die Integration in diesem Falle im allgemeinen ohne Schwierigkeiten durchgeführt werden. (Ein anderer Vorteil dieser Wahl ist, dass dem Müntz'schen Satze entsprechend eine Funktion durch ihre geradzahligigen Momente eindeutig definiert ist.) Die  $n$  ausgewerteten Integrale geben  $n$  Gleichungen für die  $n$  unbestimmten Parameter.

Die Resultate der Methode wurden mit bekannten Werten mehrerer Integrale verglichen. Einige Ergebnisse sind graphisch dargestellt. Die einfache Näherungsfunktion  $f = a_1 e^{-a_2 t} t^{a_3}$  gab Resultate, deren Fehler im Falle von  $V(t) = t^{-1}$  ungefähr 3%, im Falle von  $V(t) = t^k$  ( $k = 1, 3, 5$ ) kleiner als 1% war. Die genauere Näherungsfunktion  $f = e^{a_1 t} \sum_{i=2}^N a_i t^i$  gab Resultate, deren Fehler mit wachsendem  $N$  rasch abnahm, und sank in allen untersuchten Fällen mit 10 gliederigen Polynomen unterhalb 0,1%.





# О ЦЕНТРАХ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ БРОМИСТОЙ МЕДИ\*

П. ШВИСТ

ИНСТИТУТ ТЕХНИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ ВАН, БУДАПЕШТ

(Поступило 20. II. 1960)

В работах [1, 2] было обнаружено сильное влияние газов на люминесцентные свойства  $\text{CuBr}$ . При впуске воздуха или кислорода в ампулку с свежеприготовленным образцом наблюдалось значительное усиление низкотемпературной люминесценции бромистой меди, и наоборот, при откачке воздуха или кислорода проявлялось ослабление свечения. Наблюдение этого явления подтвердило гипотезу, выдвинутую нами ранее при изучении люминесцентных свойств системы  $\text{NaBr}-\text{CuBr}$  [3], о том, что узкие полосы люминесценции чистой соли  $\text{CuBr}$  связаны не с объемом кристалла, как это предполагается в других работах [4, 5], а с явлениями, происходящими на поверхности кристаллов бромистой меди.

Казалось естественным проверить, могут ли другие газы, кроме кислорода, оказывать аналогичное действие. Если «обработка» наших образцов другими газами ведёт к отличным от действия кислорода результатам, тогда при попытке объяснить вышеуказанный эффект должна быть учтена специфичность различных газов. В противном случае, если «обработка» различными по свойствам газами ведёт к аналогичным результатам, можно предположить, что в обнаруженном нами эффекте химическая природа газа не имеет значения.

Наш выбор остановился на аргоне, который, в противоположность кислороду, является нейтральным газом. Однако, аргон, имеющийся в нашем распоряжении, судя по результатам спектрального анализа, содержал меньше 0,02% кислорода. Поэтому, кроме аргона, содержащего следы кислорода, нами был использован также и водород высокой степени чистоты. Последний получался электролизом. Для удаления следов кислорода газ пропускался над платинированным асбестом, нагретым до температуры 300° С. Система очистки водорода от водяных паров состояла из трех ловушек, которые охлаждались жидким воздухом. Оказалось, что «обработка» наших образцов в аргоне, содержащем меньше 0,02% кислорода, или в

\* Работа была выполнена в Физическом Институте Ленинградского Государственного Университета в лаборатории академика А. Н. Теренина, которому автор приносит свою глубокую благодарность.



водороде высокой степени чистоты, даёт результаты, во всех отношениях аналогичные результатам опытов с кислородом (или с воздухом). Это показывает, что различные по свойствам газы оказывают одинаковое действие на люминесцентные свойства  $\text{CuBr}$ . То есть влияние газов, по-видимому, сводится не к химическому, а к какому-то физическому действию их на поверхность исследуемых образцов.

В настоящее время ещё трудно дать надежное объяснение наблюдаемому нами эффекту. Не исключена возможность того, что выдерживание  $\text{CuBr}$  в вакууме ведёт к распаду расположенных на поверхности центров люминесценции, а газ, наоборот, стабилизирует эти центры. Такими центрами могли бы быть, например, атомы  $\text{Cu}$  координационно окруженные атомами или ионами брома как-то иначе, чем в объёме  $\text{CuBr}$ . Как известно, бромистая медь легко распадается. Поэтому возможно, что при длительной откачке на поверхности кристалла создаются условия для обогащения медью, и образец перестает люминесцировать. Газ, как таковой, может препятствовать удалению брома с поверхностного слоя, что ведёт к стабилизации центров и восстановлению люминесценции. На возможность участия брома в центрах люминесценции указывает и то обстоятельство, что введенная в  $\text{NaBr}$  в больших количествах  $\text{CuBr}$  (порядка 1 мол.%) люминесцирует и при комнатной температуре [3], тогда как сама  $\text{CuBr}$  при комнатной температуре не люминесцирует. Здесь, по-видимому, проявляется наличие избытка атомов (ионов) брома на поверхности  $\text{CuBr}$ .

#### ЛИТЕРАТУРА

1. П. Швист, *Опт. и Спектр.*, **4**, 801, 1958.
2. П. Швист, *Труды VII. Всесоюзного совещания по люминесценции*, Москва, 1959.
3. Н. И. Иванова, П. Швист, *Опт. и Спектр.*, **3**, 399, 1957.
4. S. NIKITINE, R. REISS, *C. r. Acad. sci.*, **245**, 52, 1957.
5. E. F. Гросс, *Успехи Физ. Наук*, **43**, 575, 1957.



JOHN M. BLATT, VICTOR F. WEISSKOPF, **Theoretische Kernphysik**,  
B. G. Teubner Verlagsgesellschaft, Leipzig, 1959. 739 S.

Das Erscheinen der deutschen Übersetzung der englischen Monographie von JOHN M. BLATT und VICTOR F. WEISSKOPF »Theoretical Nuclear Physics« wird von den deutschlesenden, sich für die Kernphysik interessierenden Physikern und Studierenden lebhaft begrüßt. Schon das Durchsehen der in den kernphysikalischen Arbeiten der vergangenen Jahre zitierten Literatur zeigt, wie dieses Buch die Entwicklung der Kerntheorie befruchtet hat. Die jüngste Generation der Kerntheoretiker wurde durch dieses Buch in die theoretisch — kernphysikalische Forschungsarbeit eingeführt, und der arbeitende Forscher fand im »BLATT—WEISSKOPF« einen zuverlässigen Gehilfen.

Zwischen dem Erscheinen der englischen und der deutschen Ausgabe verfloßen sieben Jahre; eben diese Jahre haben das Aufblühen des Schalenmodells, die Geburt des Kollektivmodells und des optischen Modells, die Entdeckung der Paritätsverletzung sowie andere interessante Entwicklungen mit sich gebracht. (BRÜCKNERS Arbeiten, Untersuchung direkter Mechanismen in den Kernreaktionen.) Angesichts dieser Tatsachen kann natürlich nicht erwartet werden, dass das Buch von BLATT und WEISSKOPF den gegenwärtigen Zustand der Kerntheorie treu widerspiegeln. Doch ist es berechtigt zu glauben, dass es seinen vornehmen Platz unter den theoretisch-physikalischen Werken noch lange bewahren wird. Ebenso wie das im Buch dargestellte Material in der historischen Entwicklung als ein Fundament für die nachfolgenden Entwicklungen diene, kann der Studierende seine Kenntnisse getrost auf dieselben Grundlagen aufbauen.

Wenn man die Darstellungsweise des Buches von BLATT und WEISSKOPF charakterisieren will, muss man vor allem die besondere Vorliebe der Autoren für anschaulich-physikalische Überlegungen hervorheben. Nicht nur die neu eingeführten kernphysikalischen Begriffe werden auf diese Weise erläutert, sondern auch die verwendeten

Ideen der Quantenmechanik (z. B. Antisymmetrie der Wellenfunktion, Fermi-Statistik, Spinzustände) werden durch anschauliche Betrachtungen dem Leser näher gebracht. Diese Darstellungsweise bewirkt, dass der Geist der theoretischen Kernforschung (Verwendung von anschaulichen Vorstellungen, Plausibilitätsbetrachtungen, Analogien, usw.) dem Leser mit Erfolg eingeprägt wird. Der Text ist nicht allzu knapp gefasst, was das Buch leicht lesbar macht. Das Bestreben nach Anschaulichkeit bringt es mit sich, dass auf die mathematische Strenge manchmal weniger Nachdruck gelegt wird und das bedeutet, dass der Leser, der den Formalismus des behandelten Stoffes beherrschen will, die Ausführungen oft selbstständig durcharbeiten und ergänzen muss, was natürlich sehr lehrreich ist. Dazu muss er aber mit den Grundprinzipien der Quantenmechanik innig vertraut sein und Erfahrungen in der Lösung quantenmechanischer Probleme besitzen.

Das behandelte Material wurde folgendermassen eingeteilt. Auf das erste Kapitel, das eine Übersicht der *allgemeinen Eigenschaften des Kerns* (I. Quantenzustände, Bindungsenergie, Stabilität und Instabilität, Radius, Coulomb-Schwelle, Spin, elektromagnetische Momente, Statistik) darstellt, folgen vier Kapitel, die das Problem der *Kernkräfte* und die damit eng verknüpften *Zwei-, Drei- und Vierkörperprobleme* behandeln (II. Zweikörperprobleme bei niedrigen Energien; III. Kernkräfte; IV. Zweikörperprobleme bei hohen Energien; V. Drei- und Vierkörperprobleme). Danach folgen zwei Kapitel über *Kernspektroskopie* (VI. Allgemeine Theorie; VII. Spezielle Modelle), sowie drei Kapitel, in denen die Theorie der *Kernreaktionen* dargestellt wird (VIII. Allgemeine Theorie; IX. Anwendung der Theorie auf Experimente; X. Formale Theorie). Nach dem kurzen XI. Kapitel über *spontanen Zerfall von Kernen* wird die Theorie der Kernstrahlungen dargestellt (XII. Wechselwirkung von Kernen mit elektromagnetischer Strahlung; XIII. Beta-



Zerfall). Zum Schluss, im XIV. Kapitel, wird eine knappe Zusammenfassung über unsere Vorstellungen von der *Schalenstruktur der Kerne* gegeben.

Im Kapitel über das Zweikörperproblem bei niedrigen (d. h. kleiner als 10 MeV) Energien findet man eine Diskussion des Deuteronenproblems (Bindung, elektromagnetische Momente), die eingehende Theorie der Neutronen-Protonenstreuung (Theorie der effektiven Reichweite, Einfluss der chemischen Bindung, kohärente Streuung, Einfluss der Tensorkraft), und auch die Umrisse der Theorie der Protonen-Protonenstreuung.

Im nachfolgenden Kapitel über die Kernkräfte wird die Stabilität gegenüber Kernkollaps diskutiert, die Austauschkräfte werden eingeführt und die Sättigungsbedingungen für die allgemeinste Kombination der Austauschkräfte und Tensorkräfte aufgestellt. Abschliessend folgt eine sehr nützliche, viel zitierte Beschreibung des Isotopenspinformalismus'. — In der Einleitung dieses Kapitels findet man die folgende Äusserung der Verfasser: »Es kann sein, dass die Darlegungen dieses Kapitels durch künftige Entdeckungen bald überholt sind.« Heute sieht man, dass sie richtig geurteilt haben. Die Entwicklung ging aber nicht in der Richtung der Mehrkörperkräfte, wie die Autoren es vermuteten; auf Grund der Arbeiten von BRÜCKNER u. a. sieht man heute die Ursache der Absättigung in der Existenz des harten Rumpfes (»hard core«) der Nukleonen. Es ist interessant zu erwähnen, dass es eben WEISSKOPF war, der (in 1957, zusammen mit GOMES und WALECKA) klar und anschaulich erklären konnte, wie ein abstossender Rumpf mit dem kleinen Radius von 0,4 fermi zur normalen Dichte der Kernmaterie und dadurch zur Absättigung führen kann.

In den kurzen IV. und V. Kapiteln findet man die fundamentalen Tatsachen über Neutronen-Protonen und Protonen-Protonenstreuung bis 350 MeV, bzw. einiges über die Behandlung der Drei- und Vierkörperprobleme (Triton, Alpha-Teilchen; Vergleich der Bindungsenergien von  $H^3$  und  $He^3$ , und die Ladungsunabhängigkeit der Kernkräfte).

Kapitel VI und VII, deren Titel die gemeinsame Bezeichnung »Kernspektroskopie« enthalten, sind diejenigen, die heute vielleicht mit den wesentlichsten Veränderungen neu geschrieben werden müssten. Die Entwicklung des Schalenmodells und des Kollektivmodells erlauben uns heute, viele Gesetzmässigkeiten der Kernspektren mit der Kernstruktur in Zusammenhang zu bringen. Im Kapitel VI werden die kernspektroskopischen Tatsachen halbempirisch und phänomenologisch betrachtet (Systematik stabiler Kerne, halbempirische Massenformel, Symmetrieeffekt, magnetische Momente, Klassi-

fizierung von Kernniveaus). Die Deutung der Tatsachen auf Grund spezieller Modelle wird im Kapitel VII versucht. Die Diskussion, die sich auf das statistische Modell von WIGNER, auf das Einzelteilchenmodell (ohne Spin-Bahnkopplung), auf das Alpha-Teilchenmodell und auf das Tröpfchenmodell ausdehnt, schliesst mit kritischen und negativen Feststellungen und wurde schon in einer Fussnote zur russischen Ausgabe (1954) als »zum Teil veraltet« bezeichnet.

Die Besprechung der Kernreaktionen wird von einem Kapitel, das den Titel »Allgemeine Theorie« trägt, eingeleitet. Hier findet man die Erklärung fundamentaler Begriffe (Kanal,  $Q$ -Wert, Wirkungsquerschnitte), die elementare Quantenmechanik von Streuung und Absorption, die Bestimmung von Wirkungsquerschnitten aus den Grenzbedingungen für  $r = R$  und die Begründung des Reziprozitätssatzes. Danach findet man die Auseinandersetzung der grundlegenden BOHRschen Idee des Compoundkerns. Auf diese Grundlage wird dann die Kontinuumstheorie aufgebaut, deren begrenzte Gültigkeit den Anlass für die Aufstellung des optischen Modells von WEISSKOPF bildete. Die Besprechung der Potentialschwellen wird durch die lehrreiche Analogie zu einer Verzweigung von Wellenleitungen ergänzt. In demselben Kapitel werden noch dem Zerfall des Compoundkerns (Verdampfungsmodell, Sekundäre Reaktionen) die qualitativen sowie die quantitativen Aspekte der Resonanztheorie behandelt (Definition und Interpretation von  $\Gamma$  und  $D$ , Verhalten von Wirkungsquerschnitten in Schwellennähe, Zerfallende Zustände, Spin- und Bahndrehimpuls).

Anschliessend folgt ein Kapitel, in dem die Anwendung der allgemeinen Theorie auf Experimente besprochen wird. Reaktionen, die durch Neutronen, Protonen und Alpha-Teilchen sowie von Deuteronen ausgelöst werden, werden betrachtet.

Das Kapitel »Formale Theorie« enthält eine Besprechung der Streumatrix, der Erhaltungs- und Reziprozitätssätze, der Winkelverteilung der Reaktionsprodukte (auch deren Einschränkungen, die aus Symmetrieüberlegungen folgen) sowie der WIGNER-Formel für mehrere Niveaus. Der Titel des Kapitels ist vielleicht irreführend; es wird hier nicht ein Formalismus im Sinne der LIPPMANN-SCHWINGERSchen Arbeiten dargestellt, sondern die formalen Mittel und Eigenschaften der Theorie werden möglichst anschaulich erläutert. — Die drei Kapitel, die die Theorie der Kernreaktionen enthalten, sind die schönsten, wertbeständigsten Kapitel des Buches.

Nach einer kurzen Zusammenfassung der Theorie des spontanen Zerfalles von Kernen und der bezüglichen experimentellen Daten



folgen zwei Kapitel, die die Wechselwirkung von Kernen mit der Gamma- bzw. Beta-Strahlung behandeln. Hier findet man die allgemeine Beschreibung der Multipolfelder und der Auswahlregeln, die korrespondenzmässige Behandlung der Strahlungsübergänge; danach folgt die eingehende Theorie der Wechselwirkung des Zweikörpersystems mit dem Strahlungsfeld, die Theorie der inneren Umwandlung sowie eine Besprechung der isomeren Übergänge und der Kernreaktionen, in denen Gamma-Quanten beteiligt sind. Im Kapitel über Beta-Zerfall findet man eine Beschreibung der physikalischen Problematik, die zur Aufstellung der FERMI-Theorie führte; danach wird die FERMI-Theorie eingehend auseinandergesetzt (Auswahlregeln, Matrixelemente, Winkelkorrelation, Spektrum, Lebensdauer). Wer diese Form der Theorie des Beta-Zerfalls, die die Erhaltung der Parität annimmt, verstanden und durchgearbeitet hat, wird imstande sein, die neuere, korrekte Theorie mit Paritätsverletzung leicht zu verstehen und deren Formalismus zu beherrschen.

Im letzten Kapitel werden die experimentellen Grundlagen und die fundamentalen

Ideen des Schalenmodells (mit starker Spin-Bahnkopplung) zusammengefasst.

In den beiden sehr nützlichen Anhängen findet man eine Zusammenfassung des Formalismus' der Drehimpulsoperatoren und der Multipolfelder.

Es muss hervorgehoben werden, dass das Buch zahlreiche Originalresultate der Arbeiten enthält. Hauptsächlich muss auf die Arbeiten von WEISSKOPF über Kernthermodynamik, über die Kontinuumstheorie und über elektromagnetische Einteilchenübergänge hingewiesen werden. Auch der WEISSKOPFSche Erklärungsversuch für die Gültigkeit des Schalenmodells auf Grund des PAULI-Prinzips muss hervorgehoben werden; diese Idee ist grundlegend in den späteren wichtigen Arbeiten von BRÜCKNER.

Durch sein reichhaltiges Literaturverzeichnis wird das Buch auch bei eingehenderem Studium von Einzelproblemen zum Leitfaden und zur effektiven Hilfsquelle.

Der mässige Preis ermöglicht die Anschaffung des Buches auch denen, die sich die teuere englische Originalausgabe nicht leisten konnten.

G. GYÖRGYI





The *Acta Physica* publish papers on physics, in English, German, French and Russian. The *Acta Physica* appear in parts of varying size, making up volumes. Manuscripts should be addressed to :

*Acta Physica, Budapest 62, Postafiók 440.*

Correspondence with the editors and publishers should be sent to the same address.

The rate of subscription to the *Acta Physica* is 110 forints a volume. Orders may be placed with "Kultura" Foreign Trade Company for Books and Newspapers (Budapest VI., Népköztársaság útja 21. Account No. 43-790-057-181) or with representatives abroad.

---

Les *Acta Physica* paraissent en français, allemand, anglais et russe et publient des travaux du domaine de la physique.

Les *Acta Physica* sont publiés sous forme de fascicules qui seront réunis en volumes.

On est prié d'envoyer les manuscrits destinés à la rédaction à l'adresse suivante :

*Acta Physica, Budapest 62, Postafiók 440.*

Toute correspondance doit être envoyée à cette même adresse.

Le prix de l'abonnement est de 110 forints par volume.

On peut s'abonner à l'Entreprise du Commerce Extérieur de Livres et Journaux «Kultura» (Budapest VI., Népköztársaság útja 21. — Compte-courant No. 43-790-057-181) ou à l'étranger chez tous les représentants ou dépositaires.

---

«*Acta Physica*» публикуют трактаты из области физических наук на русском, немецком, английском и французском языках.

«*Acta Physica*» выходят отдельными выпусками разного объема. Несколько выпусков составляют один том.

Предназначенные для публикации рукописи следует направлять по адресу :

*Acta Physica, Budapest 62, Postafiók 440.*

По этому же адресу направлять всякую корреспонденцию для редакции и администрации.

Подписная цена «*Acta Physica*» — 110 форинтов за том. Заказы принимает предприятие по внешней торговле книг и газет «Kultura» (Budapest VI., Népköztársaság útja 21. Текущий счет № 43-790-057-181) или его заграничные представительства и уполномоченные.



## INDEX

<i>F. Berencz</i> : Die Rolle der Multipolwechselwirkungen bei den van der Waalsschen Attraktionen — <i>Ф. Беренц</i> : Роль мультипольного взаимодействия в вандерваальсовом притяжении .....	1
<i>F. J. Gilde</i> and <i>M. I. Bán</i> : Splittings of $d^n$ -Terms in Strong Fields of Trigonal and Rhombic Symmetries — <i>Ф. Й. Гилде</i> и <i>М. И. Бан</i> : Расщепление $d^n$ -уровней под влиянием сильных тригональных и ромбических комплексных полей .....	13
<i>C. В. Тябликов</i> и <i>Т. Шиклош</i> : Квантовая теория одноосно-анизотропных ферромагнетиков. — <i>S. V. Tiablikov</i> and <i>T. Siklós</i> : Quantum Theory of Uniaxial Anisotropic Ferromagnetic Crystals .....	35
<i>F. Berencz</i> : The Relation between Löwdin's Spin Projection Operator and Pratt's Spin Operator. — <i>Ф. Беренц</i> : Связь между спиновым проекционным оператором Лёвдина и спиновым оператором Пратта .....	47
<i>G. Pócsik</i> : Meson-Fermion PV-Interaction in the Thirring Model II. — <i>Г. Почик</i> : PV-взаимодействие мезона и фермиона в модели Тирринга II. ....	55
<i>I. Kovács</i> : Investigation of the $A^3\Pi$ -State of the NH Molecule — <i>И. Ковач</i> : Исследование состояния $A^3\Pi$ молекулы NH. ....	67

*Краткие сообщения — Brief Reports — Kurze Mitteilungen*

<i>Margit Tóth-Bitskey</i> and <i>J. Pócsa</i> : Investigations into the Elementary Processes Occurring in Electric Spark Machining .....	77
<i>T. Tietz</i> : Phase Shifts of High-Energy Dirac and Klein—Gordon Particles.....	85
<i>T. Szondy</i> : Eine einfache Annäherung der Elektronenwechselwirkungsintegrale der Quantenchemie .....	89
<i>П. Швист</i> : О центрах люминесценции бромистой меди .....	93

*Обзор книг — Book Review — Buchbesprechung*

<i>G. Györgyi</i> : John M. Blatt, Victor F. Weisskopf, Theoretische Kernphysik.....	95
--	----

# ACTA PHYSICA

ACADEMIAE SCIENTIARUM  
HUNGARICAE

ADIUVANTIBUS

Z. GYULAI, L. JÁNOSSY, I. KOVÁCS, K. NOVOBÁTZKY

REDIGIT

P. GOMBÁS

TOMUS XII

FASCICULUS 2



1960

ACTA PHYS. HUNG.



# ACTA PHYSICA

## A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA FIZIKAI KÖZLEMÉNYEI

SZERKESZTŐSÉG ÉS KIADÓHIVATAL: BUDAPEST V. ALKOTMÁNY U. 21

Az *Acta Physica* német, angol, francia és orosz nyelven közöl értekezéseket a fizika tárgyköréből.

Az *Acta Physica* változó terjedelmű füzetekben jelenik meg : több füzet alkot egy kötetet. A közlésre szánt kéziratok a következő címre küldendők :

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

Ugyanerre a címre küldendő minden szerkesztőségi és kiadóhivatali levelezés.

Az *Acta Physica* előfizetési ára kötetenként belföldre 80 forint, külföldre 110 forint. Megrendelhető a belföld számára az Akadémiai Kiadónál (Budapest V. Alkotmány utca 21. Bankszámla 05-915-111-46), a külföld számára pedig a „Kultura” Könyv- és Hírlap Külkereskedelmi Vállalatnál (Budapest I., Fő utca 32. Bankszámla 43-790-057-181 sz.), vagy annak külföldi képviselőinél és bizományosainál.

---

Die *Acta Physica* veröffentlichen Abhandlungen aus dem Bereiche der Physik in deutscher, englischer, französischer und russischer Sprache.

Die *Acta Physica* erscheinen in Heften wechselnden Umfanges. Mehrere Hefte bilden einen Band.

Die zur Veröffentlichung bestimmten Manuskripte sind an folgende Adresse zu richten :

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

An die gleiche Anschrift ist auch jede für die Redaktion und den Verlag bestimmte Korrespondenz zu senden.

Abonnementspreis pro Band : 110 forint. Bestellbar bei dem Buch- und Zeitungs-Aussenhandels-Unternehmen »Kultura« (Budapest I., Fő utca 32. Bankkonto Nr. 43-790-057-181) oder bei seinen Auslandsvertretungen und Kommissionären.

# SMALL-ANGLE COHERENT SCATTERING OF 500 keV ELECTRONS

By

I. BERKES and I. DEMETER

CENTRAL RESEARCH INSTITUTE FOR PHYSICS, BUDAPEST

(Presented by L. Jánosy. — Received 29. II. 1960)

Small-angle coherent scattering of 502 keV electrons on thin Al and Ag foils has been investigated. The electron energy was determined by measuring the accelerating voltage by means of a rotating field meter. The values of wave lengths calculated from the accelerating voltage and measured from the diameter of diffraction rings agree within the error of measurement of  $\pm 1,5\%$ .

The Debye—Scherrer electron diffraction patterns serve as a classical verification of the wave property of electrons. In order to prove the energy dependence of wavelength, electron scattering experiments have to be performed at various energies. However, for increasing energies there is a decrease in wavelength and thus in the diameter of each ring. Therefore, at higher energies the rings become diffuse in regard to their diameters, the closer ones merge into each other, while the rings of lower intensities fuse into those of higher intensities or into the incoherent background. Measurements of this kind were carried out on electrons up to about 1000 keV energy. As scattering targets Al, Ag and Au foils were used [1—5].

In the major part of the experiments carried through up to now the beam collimation was so poor that scarcely 2—3 rings could be distinguished; at higher energies (220 keV) it was only RUPP [2], who succeeded in resolving seven rings using a gold foil as target. The experiments — as far as a quantitative evaluation was possible at all — verified DE BROGLIE's theory within the experimental accuracy, i.e. with an error of 3—20%, the smaller values corresponding to investigations carried out at lower energies.

The aluminium scattering target used in our experiments was prepared by vacuum evaporation. Aluminium was deposited onto a glycerine-coated glass plate. The foil thus obtained was about 0,06 mg/cm<sup>2</sup> thick. The electron beam was produced in our 1 MeV Van de Graaff generator [6]. The electron current struck the scattering foil after having passed through a 0,5 mm diam. collimator and the scattered electrons were detected on a film placed at a distance of 42 cm from the foil. In order to obtain a better resolution of the rings of various intensities several runs were made using different illuminations. In the Figure the three diffractograms are copied to a single picture.



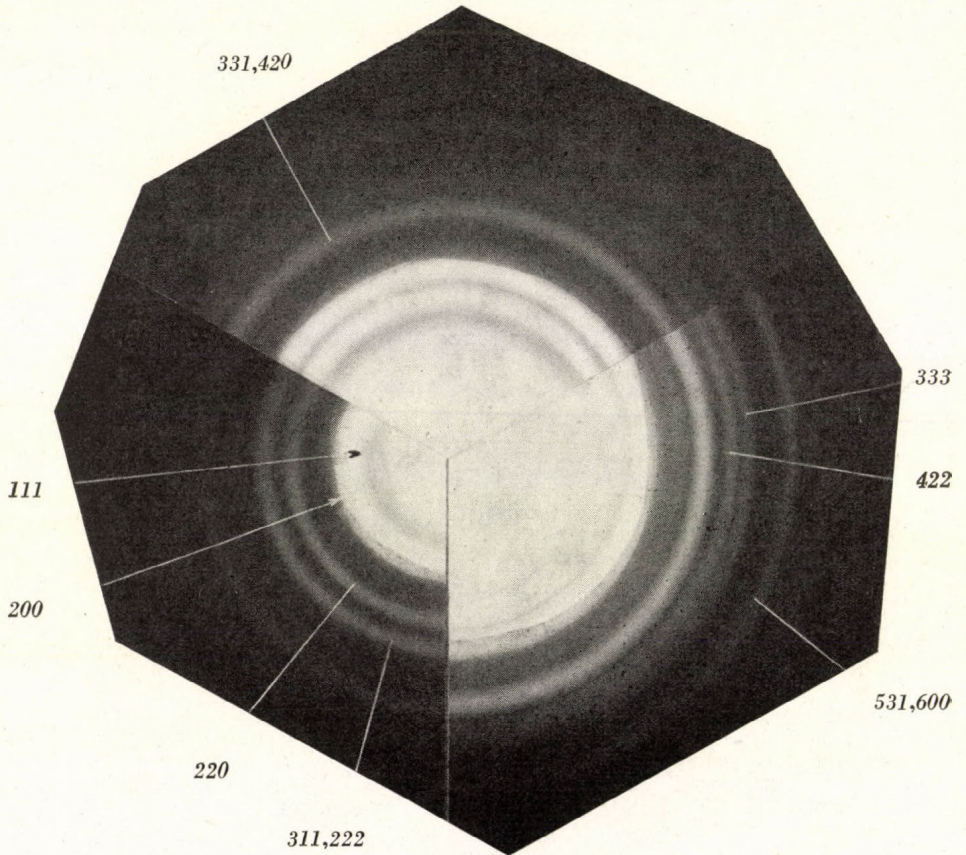


Fig. 1. Small-angle coherent scattering by aluminium. Some of the Debye—Scherrer rings are labelled with the Miller indices

The accelerated electrons attained 502 keV energy ( $\lambda = 1,41 \cdot 10^{-10}$  cm). The voltage was measured with an error of  $\pm 1,5\%$ . Owing to the given diameter of the primary beam, to the angular spread (semi-cone angle of angular spread was found to be  $5 \cdot 10^{-4}$  radians) and to the multiple scattering occurring in the foil the rings are broadened. The mean diameter of the rings was determined microscopically (that of some of lower intensities visually) and the scattering angles for maximum intensities as calculated and measured are shown in the Table. The intensity ratios of individual rings are in qualitative agreement with those reported in the literature for lower energies [7, 8]. Ring (440) could not be identified because of its low intensity as well as some of the rings lying closer fused into each other. The measured values of angular scattering show a deviation of  $-1,5\%$  to  $+2,5\%$  from theoretical results. The cause of this spread is the uncertainty in the determination of the line center. The



mean deviation was found to be  $(1.1 \pm 0.3)\%$  which falls within the accuracy of voltage measurement. Thus the energy dependence of wavelength is verified by our measurements to a precision of  $\pm 1.5\%$ .

Table

Miller indices $h_i$	$\sum_{i=1}^3 h_i^2$	$10^2 \vartheta$ calculated	$10^2 \vartheta$ measured
111	3	0,609	0,60
200	4	0,703	0,72
220	8	0,993	0,99
311	11	1,162	1,19
222	12	1,215	1,21
400	16	1,400	1,42
331	19	1,53	1,58
420	20	1,57	
422	24	1,72	1,75
333	27	1,82	1,87
440	32	1,98	—
531	35	2,08	
600	36	2,10	2,12
620	40	2,22	2,22
533	43	2,30	
622	44	2,32	2,33

Thanks are due to Dr. P. SZABÓ for helpful discussions.

## REFERENCES

1. G. P. THOMSON, Proc. Roy. Soc., **A 117**, 600, 1928.
2. E. RUPP, Ann. d. Phys., **9**, 458, 1931; **10**, 927, 1931.
3. M. KOSMAN and A. ALICHANIAN, Natwiss., **21**, 250, 1933.
4. E. HUGHES, Phil. Mag., **19**, 129, 1935.
5. M. POPOULAR, Comp. Rend., **238**, 2411, 1954.
6. I. BERKES, I. DEMETER and P. KOSTKA, Magy. Fiz. Foly., **6**, 209, 1958.
7. M. MACK and R. WIERL, Zs. f. Phys., **60**, 741, 1930.
8. S. v. FRIESEN and S. LENANDER, Ark. Mat. Astr. Fys., **33**, No. 20, 1947.

## КОГЕРЕНТНОЕ РАССЕЯНИЕ 500 КЭВ ЭЛЕКТРОНОВ ПОД МАЛЫМИ УГЛАМИ

И. БЕРКЕШ и И. ДЕТЕТЕР

## Резюме

Исследуется малоугловое когерентное рассеяние 502 КЭВ электронов на фольге Al и Ag. Энергия электронов определяется измерением ускоряющего напряжения. Напряжение измерялось ротационным прибором для измерения поля. Диаметры дифракционных колец, вычисленные из энергии, согласуются с измеренными в пределах точности измерений  $\pm 1,5\%$ .





# DER BEITRAG DER OKTUPOLKRÄFTE ZU DEN VAN DER WAALSSCHEN ATTRAKTIONEN

Von

F. BERENCZ

INSTITUT FÜR THEORETISCHE PHYSIK DER UNIVERSITÄT, SZEGED

(Vorgelegt von A. Kónya. — Eingegangen 15. III. 1960)

Bei der Untersuchung der Wechselwirkungen zweier Heliumatome wird festgestellt, dass die Dipol-Oktupol-Energie grössenordnungsmässig der Dipol-Quadrupol-Energie gleich ist, sodass in Näherungsverfahren bei konsequenten Rechnungen beide entweder berücksichtigt oder ausser Betracht gelassen werden müssen.

In einer früheren Arbeit [1] wurde der Ausdruck für die Wechselwirkung zwischen zwei Molekülen so verallgemeinert, dass die höheren Multipolwechselwirkungen auch berücksichtigt werden. Die Rolle der höheren Multipolwechselwirkungen bei den van der Waalsschen Anziehungskräften soll bei der Wechselwirkung zweier Heliumatome geprüft werden.

Es wird angenommen, dass zwei Heliumatome im Grundzustande so weit von einander entfernt sind, dass der Kernabstand  $R$  im Verhältnis zur Masse der Heliumatome sehr gross ist, dass heisst, dass die Ladungen der Atome einander nicht überdecken. In diesem Falle sollen die durch  $r_{a1}$  und  $r_{a2}$  gegebenen Elektronen zum Kern  $a$  und die durch  $r_{b1}$  und  $r_{b2}$  gegebenen Elektronen zum Kern  $b$  gehören. Die Eigenfunktion, wenn sich die Atome im Zustande  $K$  bzw.  $\kappa$  befinden, hat dann die folgende Form:

$$\Psi_{ak} \Psi_{b\kappa} = \psi_{ak_1}(r_{a1}) \psi_{ak_2}(r_{a2}) \psi_{b\kappa_1}(r_{b1}) \psi_{b\kappa_2}(r_{b2}). \quad (1)$$

Der Grundzustand des System ist der durch

$$k_1 = k_2 = \kappa_1 = \kappa_2 = 0$$

gekennzeichnete Zustand. Dieser ist kugelsymmetrisch. Die Störungsenergie der ersten Näherung ist folglich gleich Null, und für die Störungsenergie in zweiter Näherung ergibt sich das folgende Resultat:

$$\Delta E_2 = \sum_{k,\kappa} \frac{|V_{00,k\kappa}|^2}{2E_0 - E_k - E_\kappa}, \quad (2)$$

wo

$$V_{00,k\kappa} = \int \Psi_{a0} \Psi_{b0} V(a,b) \Psi_{ak} \Psi_{b\kappa} d\tau.$$



Wie bekannt, beträgt die Energie des Grundzustandes eines Heliumatoms 24,463 eV und dieselbe des ersten angeregten Zustandes 4,7 eV [2], folglich liegt die Energie aller diskreten Zustände zwischen 20 und 24,5 eV. Die in (2) stehende Summe wird mit der Näherung berechnet, dass im Nenner jedes Glied gleich dem Ionisationspotential genommen wird. In diesem Falle ergibt sich auf Grund des in der Arbeit [1] angegebenen matrixalgebraischen Zusammenhanges für die Störungsenergie der zweiten Näherung das folgende Resultat:

$$\Delta E_2 = \frac{1}{2E_0} \sum'_{k,\neq} |V_{00,k\kappa}|^2 = \frac{(V^2)_{00,00}}{2E_0}. \quad (3)$$

Der Ausdruck für  $V$  nimmt ebenfalls auf Grund der in der Arbeit [1] angegebenen allgemeinen Potentialgleichung die folgende Form an:

$$\begin{aligned} V = & \frac{e}{R^3} \sum_{i,j=1}^2 (x_{a1i} \xi_{b1j} + x_{a2i} \xi_{b2j} - 2x_{a3i} \xi_{b3j}) + \\ & + \frac{3}{2} \frac{e^2}{R^4} \sum_{i,j=1}^2 [r_i^2 \xi_{b3j} - x_{a3i} s_j^2 + (2x_{a1i} \xi_{b1j} + \\ & \quad + 2x_{a2i} \xi_{b2j} - 3x_{a3i} \xi_{b3j})(x_{a2i} - \xi_{b3j})] + \\ & + \frac{3}{4} \frac{e^2}{R^5} \sum_{i,j=1}^2 [r_i^2 s_j^2 - 5r_i^2 \xi_{b3j} - 5x_{a3i} s_j^2 - 15x_{a3i}^2 \xi_{b3j}^2 + \\ & \quad + 2(x_{a1i} \xi_{b1j} + x_{a2i} \xi_{b2j} - 4x_{a3i} \xi_{b3j})^2] + \\ & + \frac{1}{2} \frac{e^2}{R^5} \sum_{i,j=1}^2 [-3(r_i^2 + s_j^2)(x_{a1i} \xi_{b1j} + x_{a2i} \xi_{b2j}) - 4x_{a3i} \xi_{b3j} + \\ & \quad + 5(3x_{a1i} \xi_{b1j} + 3x_{a2i} \xi_{b2j} - 4x_{a3i} \xi_{b3j})(x_{a3i}^2 - \xi_{b3j}^2) + \dots]. \end{aligned} \quad (4)$$

Substituieren wir (4) in (3):

$$\begin{aligned} \Delta E_2 = & \frac{4}{3} \frac{e^4}{E_0 R^6} \left[ (r^2)_{00}^2 + \frac{3}{R^2} (r^4)_{00} (r^2)_{00} + \right. \\ & \left. + \frac{21}{5R^4} (r^4)_{00}^2 + \frac{4}{R^4} (r^6)_{00} (r^2)_{66} + \dots \right]. \end{aligned} \quad (5)$$

In diesem Energieausdruck repräsentiert die erste Summe die Dipol-, die zweite die Dipol-Quadrupol-, die dritte die Quadrupol- und die vierte die Dipol-Oktupol-Energie. Zur Berechnung der einzelnen Energien werden die SLATERSchen Eigenfunktionen [3] benutzt, die für ein jedes Heliumatom die

folgende Gestalt haben:

$$\left(\frac{r}{a_0}\right)^{n-1} \exp\left(-\frac{z-s}{n} \cdot \frac{r}{a_0}\right), \quad (6)$$

wo  $n = 1$  und  $z - s = 1,6875$  ist. Auf Grund dieser Eigenfunktionen ergeben sich gemäss dem Anhang für die in (5) stehenden Matrixelemente die folgenden Resultate:

$$(r^2)_{00} = 1,05 a_0^2, \quad (r^4)_{00} = 2,79 a_0^4 \quad \text{und} \quad (r^6)_{00} = 13,64 a_0^6. \quad (7)$$

Mit diesen Werten und mit der Bezeichnung  $\varrho = \frac{R}{a_0}$  nimmt der Ausdruck der Störungsenergie in zweiter Näherung die folgende Form an:

$$\begin{aligned} \Delta E_2 &= 4 \frac{e^4}{2a_0^2 E_0 \varrho^6} \left[ 0,739 + \frac{5,86}{\varrho^2} + \frac{21,8}{\varrho^4} + \frac{38,2}{\varrho^4} + \dots \right] = \\ &= -\frac{9,70}{\varrho^6} \left[ 1 + \frac{7,9}{\varrho^6} + \frac{30}{\varrho^4} + \frac{52}{\varrho^4} + \dots \right]. \end{aligned} \quad (8)$$

Beziehen wir nun die Gleichung (8) auf das van der Waalssche Minimum, das im Falle zweier Heliumatome um  $\varrho = 5,5$  liegt. Es ergibt sich dann, dass die Dipol-Quadrupol-Energie 26%, die Quadrupol-Quadrupol-Energie 3%, die Dipol-Oktupol-Energie 6% der Dipol-Dipol-Energie ist. Die zwei letzteren sind also grössenordnungsmässig gleich einander.

\*

Ich danke auch an dieser Stelle Herrn Dr. J. I. HORVÁTH für die Durchsicht des Manuskriptes und für seine wertvollen Ratschläge.

### Anhang

Der Normierungsfaktor wurde auf Grund des Zusammenhanges [4]

$$\int_0^{\infty} z^n \exp(-xz) dz = \frac{n!}{x^{n+1}} \quad (\text{für ganze positive } n)$$

berechnet:

$$\int_0^{\infty} \left(\frac{r}{a_0}\right)^{2n-2} \exp\left(-2 \frac{z-s}{n} \cdot \frac{r}{a_0}\right) r^2 dr = a_0^3 \frac{(2n)!}{\left(2 \frac{z-s}{n}\right)^{2n+1}},$$



der Normierungsfaktor hat also die Form:

$$\frac{1}{a_0^3} \frac{\left(2 \frac{z-s}{n}\right)^{2n+1}}{(2n)!}$$

Mit diesem Normierungsfaktor ergeben sich für die Matrixelemente die folgenden Ausdrücke:

$$\begin{aligned} (r^2)_{00} &= \frac{1}{a_0^3} \frac{\left(2 \frac{z-s}{n}\right)^{2n+1}}{(2n)!} \cdot \frac{1}{a_0^{2n-2}} \int_0^\infty r^{2n+2} \exp\left(-2 \frac{z-s}{n} \cdot \frac{r}{a_0}\right) dr = \\ &= \frac{(2n+2)(2n+1)}{\left(2 \frac{z-s}{n}\right)^2} a_0^2, \\ (r^4)_{00} &= \frac{(2n+4)(2n+3)(2n+2)(2n+1)}{\left(2 \frac{z-s}{n}\right)^4} a_0^4, \\ (r^6)_{00} &= \frac{(2n+6)(2n+5)(2n+4)(2n+3)(2n+1)}{\left(2 \frac{z-s}{n}\right)^6} a_0^4. \end{aligned}$$

#### LITERATUR

1. F. BERENCZ, *Acta Phys. Hung.*, **12**, 1, 1960.
2. W. KAUFMANN, *Quantum Chemistry*, Academic Press Inc., New York, 1957. S. 303.
3. L. PAULING und E. B. WILSON, *Introduction to Quantum Mechanics*, Mc Graw-Hill Comp. Inc., New York and London, 1935. S. 184.
4. H. HELLMANN, *Einführung in die Quantenchemie*, Deuticke, Leipzig, 1937. S. 332.

#### ДЕЙСТВИЕ ОКТОПОЛЬНЫХ СИЛ В ПРИТЯЖЕНИИ ВАН ДЕР ВААЛЬСА

Ф. БЕРЕНЦ

#### Резюме

При исследовании взаимодействия двух атомов гелия определяется, что дипольно-октопольная энергия по порядку величины согласуется с дипольно-квадрольной энергией, и, таким образом, при последовательном расчёте или обе принимаются во внимание, или обеими необходимо пренебречь.

# A PULSED ( $d,t$ ) NEUTRON SOURCE

By

A. ÁDÁM, L. BOD, Z. SZABÓ and L. SZEGHŐ

LABORATORY FOR REACTOR PHYSICS AND ENGINEERING, CENTRAL RESEARCH INSTITUTE OF PHYSICS,  
BUDAPEST

(Presented by L. Jánossy. — Received 16. III. 1960)

A 200 kV horizontally arranged accelerator has been developed and built for the producing of neutrons in the  $T^3(d, n)He^4$  reaction. Operating and focusing conditions of the apparatus were investigated. A net ion current of 200—300  $\mu A$  could be focused on the target. The neutron yield as measured from a Zr—T target was found to be, for a clean target,  $3 \cdot 10^7$  neutrons/ $\mu$  Coul.

In recent years an increasing number of devices has been developed in which neutrons are produced by means of the  $T^3(d, n)He^4$  nuclear reaction. The use of this reaction as a neutron source is in many cases very convenient, since the maximum cross section for the reaction appears at relatively low voltages, that is at about 120 kV. In this range the cross section value exceeds by about two orders of magnitude that of the  $D^2(d, n)H^3$  reaction, also frequently in use for neutron generation. This large cross section permits to obtain a considerable neutron yield even at low voltages.  $10^8$  neutrons/ $\mu$  Coul have been measured in experiments on a thick Zr—T target for 200 keV energy deuterium ions [1]. In low voltage accelerators fairly high currents can be focused on the target. Thus in some experiments it has been possible to focus for a short time 10 mA and in continuous operation 5 mA on the target [2]. In this way these devices may yield up to  $10^8$ — $10^{12}$  neutrons/sec.

A similar high yield neutron source was required for the research programme in reactor physics planned at the Central Research Institute of Physics. Within the scope of this programme of investigating among other problems the properties of organic moderators, as a first step, the device will be used for measurements of diffusion constants and diffusion length. For this purpose the neutrons have to be generated in a pulsed operation.

In the following the building of the pulsed neutron source and some operational experiences will be reported.

## Description of apparatus

A schematic drawing of the apparatus is given in Fig. 1. The neutron generator is actually a 200 kV particle accelerator by which deuterium ions are accelerated. The accelerating tube is horizontally arranged. The components of the high voltage part of the apparatus are fed from a 3 kVA single phase generator driven by an asynchronous motor kept at ground potential. The



shafts of the motor and the generator are connected by a plexiglass rod, 50 mm in diameter and 500 mm long. The small axial deviation between the shafts is compensated by two elastic clutches.

The accelerating tube is directly connected to the oil diffusion pump suspended on a stand and protrudes into the corona shield as seen in Fig. 1. The ion source is placed on this protruding end of the accelerator column while the other end is occupied by the tritium target.

The radiofrequency type ion source was built according to the design described by ERŐ [3]. The oscillator responsible for the discharge has an output of 300 W at 50 Mc frequency. Owing to this high oscillator output, the rasothersm glass envelope burnt through several times and also the glass surrounding the quartz probe burnt up after short use. Therefore we decided to use exclusively silica glass and since then no failures of such nature occurred.

The pulsation of the ion current, that is of neutron production, is achieved by pulsing the extracting voltage. With this method it is easy to produce neutron bursts of a few  $\mu\text{sec}$  duration as required in the planned experiments. Furthermore, this method of pulsation leads to a far better neutron yield than that of sweeping the ion current before the slit. Characteristics of the pulse generator used for pulsing the extracting voltage are the following: Pulse width 2—10  $\mu\text{sec}$ , repetition frequency 50—1000 per second and pulse height up to 8kV. This pulse generator triggers at the same time the oscillator. This latter starts to work some  $\mu\text{secs}$  prior to the appearance of the extracting pulse and ceases to operate a few  $\mu\text{secs}$  after termination of the extracting pulse. The ion pulse width was ascertained to be equal to the extracting pulse width, at least, within an accuracy of 0,1—0,2  $\mu\text{sec}$ .

The ion focusing optical system consists of two electrostatic lenses, namely the prefocusing lens and the accelerating lens. The system is built up of three axially arranged metal cylinders, as shown in Fig. 2. The shortest cylinder which serves as first electrode of the prefocusing lens, is kept at the potential of the extracting probe. The next cylinder which is at the same time the second electrode of the prefocusing lens and the first electrode of the accelerating lens, is fed from a maximum 40 kV power supply placed into the high voltage part of the arrangement. The third electrode is kept at ground potential. These three electrodes kept at different potentials are insulated by two elizolit cylinders. An aluminium cast disc inserted between the two elizolit cylinders supports the prefocusing electrode. This disc was chosen to be large in order to radiate more effectively the heat due to the ions striking the prefocusing electrode.

The target containing the tritium is mounted on a copper support. Heating and cooling of the target is provided for. Oil vapours released from the oil diffusion pump produce a thin oil coating on the target surface and this considerably reduces and eventually completely prevents the production of

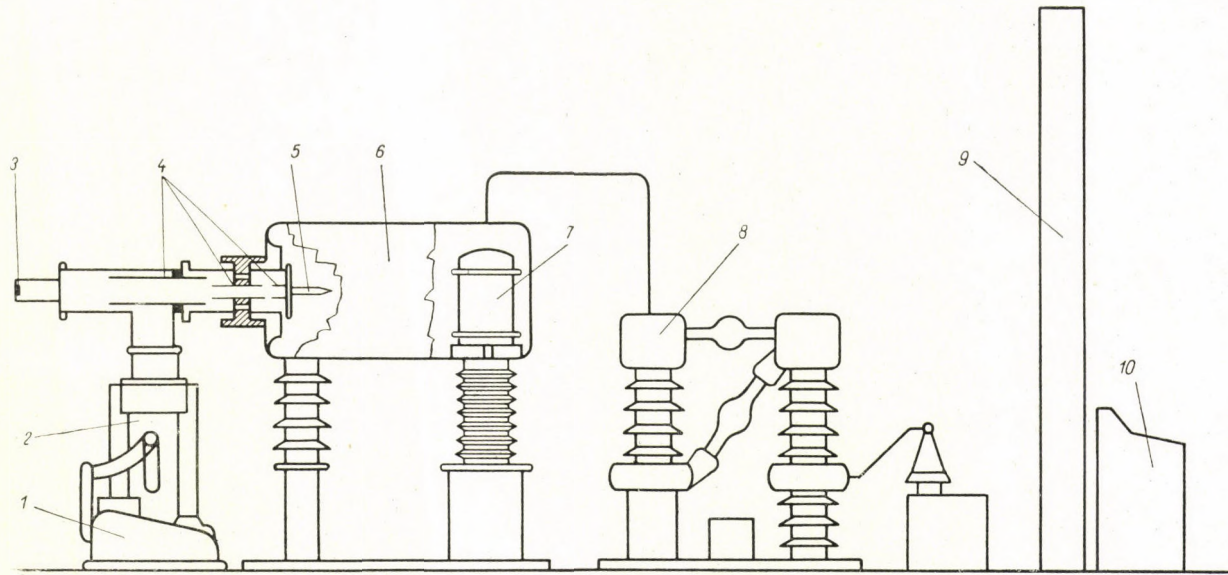


Fig. 1. Schematic drawing of the neutron generator

- |                       |                      |
|-----------------------|----------------------|
| 1. Rotational pump    | 6. Corona shield     |
| 2. Oil diffusion pump | 7. 3kVA generator    |
| 3. Target             | 8. Cascade generator |
| 4. Electrodes         | 9. Radiation shield  |
| 5. Ion source         | 10. Control device   |



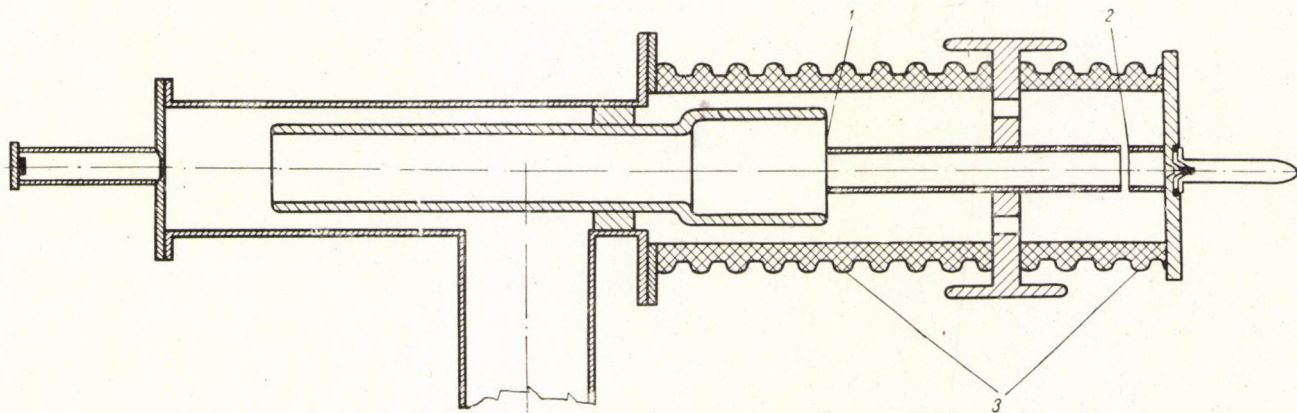


Fig. 2. Ion optics

1. Accelerating lens 2. Prefocusing lens 3. Elizolit cylinder

neutrons. In order to avoid this deteriorating effect, the target has to be at a higher than the ambient temperature, thus it is kept at 100° C. The tritium is contained in a Zr layer evaporated on tungsten. Since at about 400° C tritium leaves zirconium, provision was made for water cooling. A copper-constantan thermocouple was used to control the target temperature. In our experiments cooling was required only in continuous operation for currents exceeding 200—300  $\mu\text{A}$ . On the other hand, in pulsed operation we had to heat the target to reach the required temperature of 100° C. It has been found that the heating of the target appreciably contributed to the maintenance of a steady neutron yield.

Since, during the operation gamma and neutron radiation becomes higher than permissible, the accelerator is for safety controlled from an adjoining room.

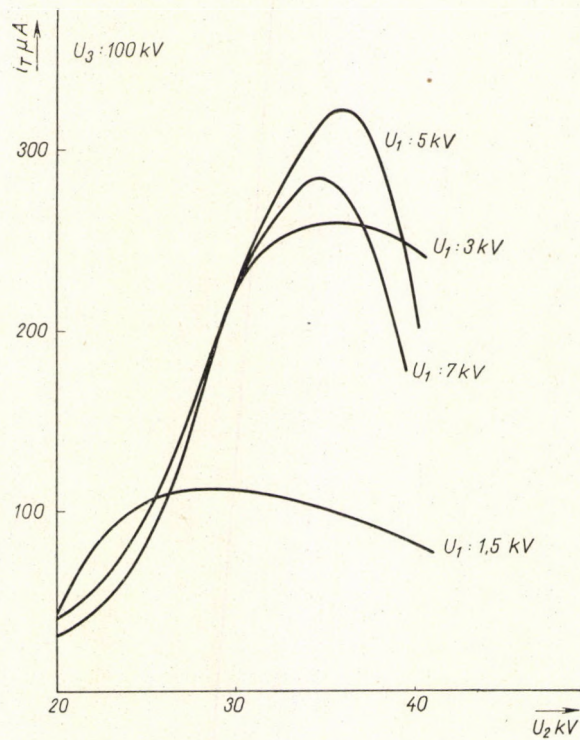
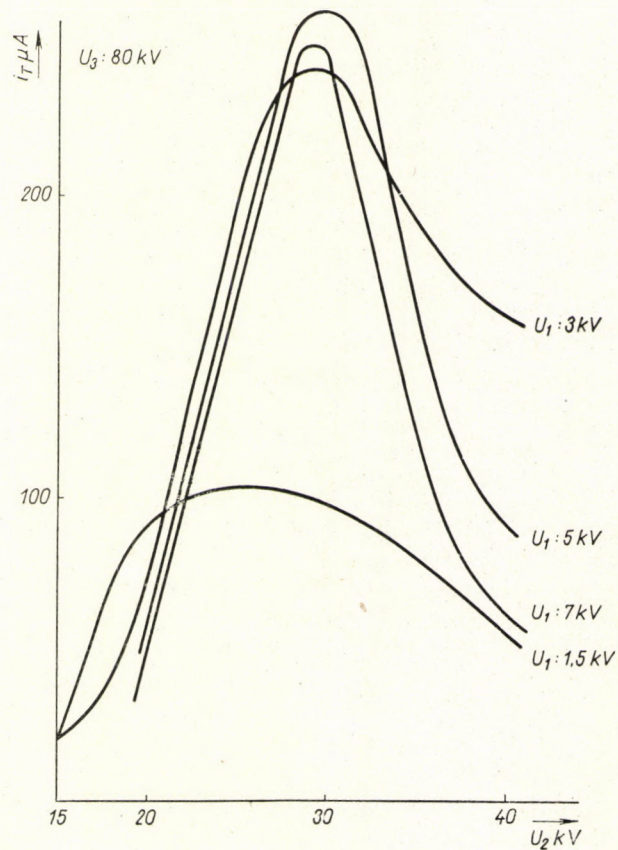
### Operation characteristics, checking measurements

Focusing properties of the optical system were studied in continuous as well as in pulsed operation. The focusing rate was determined in continuous operation by measuring the target current and in pulsed operation by counting the pulses originated from neutrons. The target current as well as the number of neutrons in pulsed operation were measured versus the prefocusing voltage at constant accelerating voltage for various values of the extracting potential. The experiments were performed at 80, 100, 120, 150 kV accelerating voltages for 1.5, 3, 5, 7 kV extracting potentials. The focusing curves are shown in Figs. 3—6. The measured current values correspond quite accurately to the focusing conditions. The ion beam can be conveniently viewed through a glass tube placed before the target so that measured values are easily compared with the focusing rate observed. The beam is visible due to the bluish light caused by the residual gas excited by the accelerated ions and electrons.

It is seen from the curves that the ion beam is focused well by the optical system only at low extracting potentials, if the accelerating voltage is about 150 kV. If the extracting voltage is high, focusing takes place at 80—120 kV accelerating voltages. Namely, the electrode arrangement seen in Fig. 2 differs from the original design which had to be modified because of the frequent breakdowns at high voltages. In the new arrangement 200—300  $\mu\text{A}$  ion current could be focused on the target, whereas in the previous one ion currents of 500—700  $\mu\text{A}$  reached the target. In order to increase the current, we intend shortly to improve the optical system.

An appreciable fraction of the current measured on the target is contributed not by ions but by secondary electrons released by ions. In order to determine the neutron yield, we have to know the value of the net ion current. The value of the latter can be obtained, as usual, by applying a bias potential to

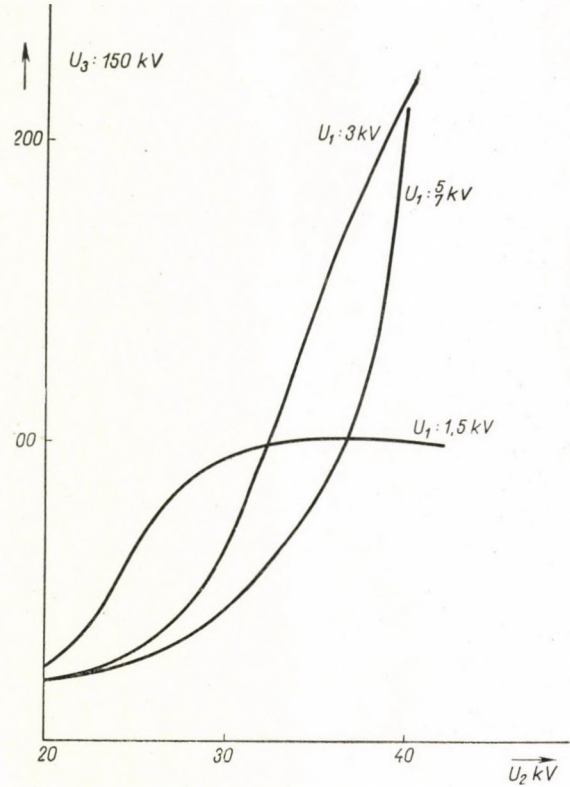
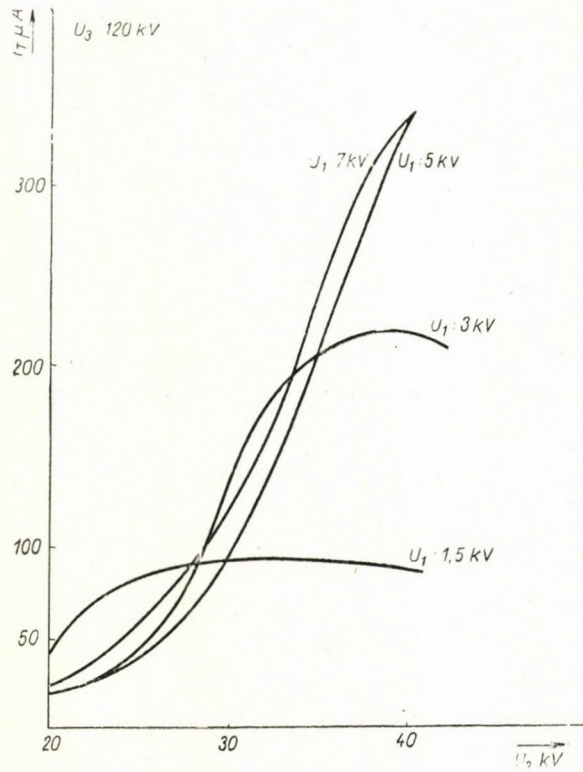




Figs. 3, 4. Focusing curves

$U_1$  = Extracting voltage  
 $U_2$  = Prefocusing voltage

$U_3$  = Accelerating voltage  
 $i_T$  = Target current



Figs. 5, 6. Focusing curves

$U_1$  = Extracting voltage  
 $U_2$  = Prefocusing voltage

$U_3$  = Accelerating voltage  
 $i_T$  = Target current



suppress the electrons emerging from the target. Measuring now the target current under such conditions in terms of the bias potential it is found that the value of the current becomes constant above a given value of the potential. This constant value of the current may be considered as the net ion current, provided that no electrons are flying together with the ions toward the target. (Electrons produced in the field-free part of the tube and moving toward the target are accelerated by the biased field onto the target.) For the purpose of determining the amount of these stray electrons, a diaphragm was placed in front of the target (Fig. 7) the potential of which was chosen so as to repel the electrons flying toward the target. In Fig. 8 the target current is seen plotted versus the bias potential for various diaphragm voltages. It is seen from the curves that the current actually takes up a constant value, it depends, however, somewhat on the diaphragm potential. The shapes of the curves indicate that at diaphragm potentials between 100—300 V, provided that the latter exceeds 250 V, the value of the target current becomes virtually independent both of the diaphragm voltage and the bias potential. The slight dependence on diaphragm voltage is probably due to the fact that electrons travelling along the axis are not affected by the diaphragm.

The net ion current was measured in the above experiments on a 90 mm diameter metal plate supporting the target. If the beam is focused, the major fraction of ions strikes a small 2—3 mm diameter surface. Nevertheless it was advisable to measure the net ion current on the total actual target surface (14 mm diam.). For this purpose the metal plate was divided into two parts isolated from each other — the central “small target” (14 mm diam.) and the surrounding area referred to as the “large target” (90 mm diam.). To each target a different voltage as compared with the ground potential was applied and the currents were measured separately. The net ion current on the actual target was determined from the measured values with the following assumptions:

- 1) The secondary electrons do not release any further electrons.
- 2) The secondary electron current emerging from the target is proportional to the ion current striking the target surface. The proportionality factor is  $a$ .
- 3) The more positive part of the target collects all secondary electrons leaving the other part.

The net ion current  $i$  focused on the small target is given by

$$i = I_1 + \frac{a}{1 + a} I_2,$$

where  $I_1$  and  $I_2$  are the currents measured on the small and on the large targets,





voltages between the two targets. In the following Table the values measured in one of our experiments are shown.

Small target V	Large target V	Small target 3A	Large target $\mu\text{A}$	Small+large targets 3A
300	300	+780	-600	180
300	200	-30( $I_1$ )	+210( $I_2$ )	180
200	300	+960( $I_1$ )	-780	180

From the above we have

$$a = 5,5,$$

$$i = 148,5 \mu\text{A}.$$

The neutron yield was determined by measuring the alpha particles produced in the  $\text{T}^3(d, n) \text{H}^4$  reaction. For the detection of alpha particles plastic phosphor and a FEU-19 multiplier was used. The alpha detector was located as shown in Fig. 9. It is placed rather far from the target partly to avoid the

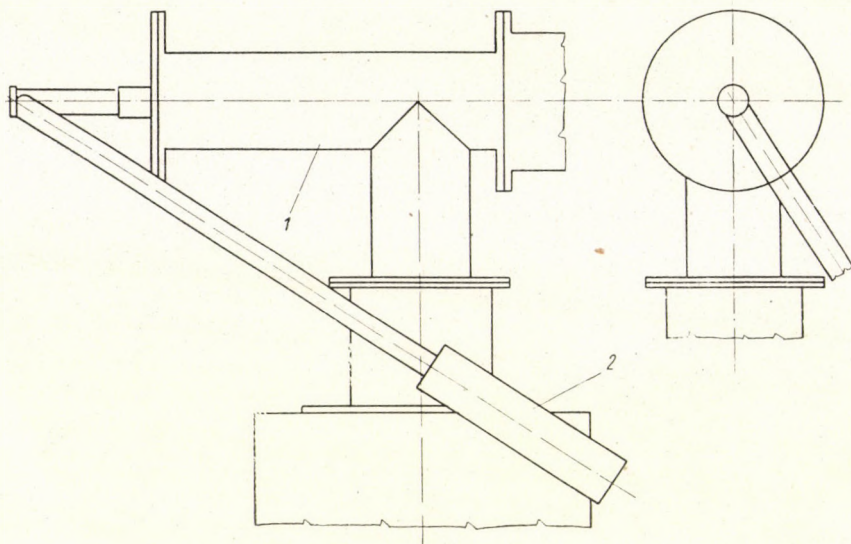


Fig. 9. Location of the  $\alpha$ -detector  
1. Accelerating tube      2.  $\alpha$ -detector

overloading of the counter, partly for a more convenient determination of the solid angle. If the detector is placed close to the target, the accurate dimensions of that part of the target have to be known, where the neutrons are pro-

duced. With a detector sufficiently far from the target, that is, if the diameter of the former is large enough, the magnitude of the target plays a minor part in the determination of the solid angle and may be considered a point.

We have chosen this method to measure the neutron yield because of the high efficiency of alpha counters which is almost as high as 100%. This efficiency manifests itself clearly by the amplitude spectrum of pulses initiated

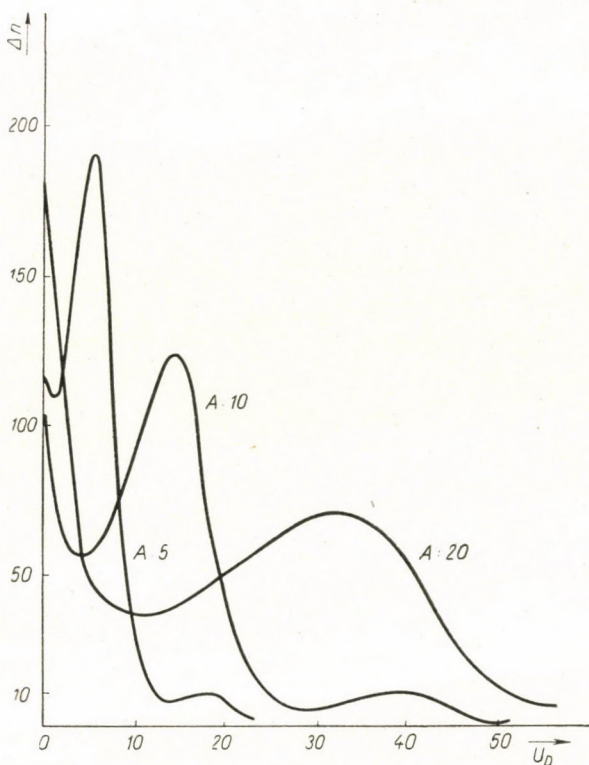


Fig. 10. The  $\alpha$ -spectrum

$\Delta n$  = Number of counts recorded with differential discriminator  
 $U_D$  = Discrimination voltage  
 $A$  = Amplification

by alpha particles (Fig. 10). The monotonously decreasing part at the beginning of the curve is due to multiplier noise, to photons and to beta rays emitted by the tritium. In measuring the neutron yield the total number of pulses was counted at a discriminating voltage (2 V for an amplification factor of 10) at which the pulses due to noise are negligible. The alpha counting efficiency thus achieved was about 96%.

In our experiments the neutron yield at 150 kV accelerating voltage was measured as  $3.10^7$  neutrons/ $\mu$  Coul. The yield is considerably affected by the



cleanness of the target surface. With a target already in use for some time, the neutron yield decreased to  $2 \cdot 10^5$  neutrons/ $\mu$  Coul.

The net ion current was measured by the method described above. In these experiments the accelerator current was purposely decreased to 10—20  $\mu$ A, since in spite of the built-in radiation shield, no higher currents could be allowed in continuous operation in order to safeguard the personnel. In pulsed operation no such dosimetric problems occur.

We should like to express our thanks to Deputy Director L. PÁL, Doctor of Physical Sciences, for suggesting the problem and for his continuous interest in our work.

#### REFERENCES

1. A. O. HANSON, R. F. TASCHEK and J. H. WILLIAMS, *Rev. Mod. Phys.*, **21**, 635, 1949.
2. R. A. PECK Jr. and H. P. EUBANK, *Rev. Sci. Inst.*, **26**, 444, 1955.
3. J. ERŐ, Candidate's Thesis, 1954.

#### ИМПУЛЬСНО-МОДУЛИРОВАННЫЙ ИСТОЧНИК (*d,t*) НЕЙТРОНОВ

А. АДАМ, Л. БОД, З. САВО и Л. СЕГЁ

#### Резюме

Был разработан и сооружен 200 кв-ный ускоритель горизонтального расположения для производства нейтронов при ядерных реакциях  $T^3(d, n) He^4$ . Исследовались работы ускорителя и условия фокусирования. На мишень может быть фокусирован чистый поток ионов в 200—300 мка. Был измерен в случае мишени Zr—T выход нейтронов, который при чистой мишени составлял  $3 \cdot 10^7$  нейтр./мккулон.

# INVESTIGATION OF THE EXCITED STATES OF THE H<sub>2</sub>-MOLECULE BY MEANS OF THE UNITED ATOM MODEL

By

I. TAMÁSSY-LENTEI

INSTITUTE OF THEORETICAL PHYSICS, KOSSUTH LAJOS UNIVERSITY, DEBRECEN

(Presented by A. Kónya. — Received 28. III. 1960)

For the determination of the energy of the excited states of the H<sub>2</sub>-molecule the united atom model seems to be appropriate. For the singly excited states of types  $1s\sigma$   $n\ell\lambda$  computations have been made in the cases  $n\ell\lambda = 2s\sigma, 2p\sigma, 2p\pi, 3s\sigma, 3p\sigma, 3p\pi, 3d\sigma, 3d\pi, 3d\delta, 4s\sigma, 4p\sigma, 4p\pi, 4d\sigma, 4d\pi, 4d\delta, 4f\sigma, 4f\pi, 5p\pi, 5d\sigma, 5f\sigma, 6p\pi$  with hydrogenlike one-electron wave functions centred on the central point of the molecule. If we take the wave function of the electron  $1s\sigma$  as a linear combination of functions  $1s, 2s, 3d$ , the results obtained for the energy agree fairly well with the experimental values.

The simplest molecule, H<sub>2</sub>, as is shown by experiments, has a great number of excited states. In the ground state of the molecule, both electrons are in the lowest orbital  $1s\sigma$  (using united atom denotations). In most of the excited states one of the electrons is excited into a higher orbital  $n\ell\lambda$ , these are the singly excited states. In such states according to the two possible values 0 and 1 of the resultant spin, there always exists a singlet as well as a triplet state. Besides these singly excited states there have been observed also states corresponding to the case where both electrons are excited.

The theoretical determination of the energies of the excited states mentioned has been the object of numerous investigations in earlier years ([1], [2], [3], [4]). The computations so far effected were restricted, however, to states of type  $1s\sigma$   $2\ell\lambda$ , because the computation of the integrals occurring in connection with higher states presents difficulties. Of course, the computational work to be done and the difficulties to be overcome depend greatly on the form of the wave function used. In view of this fact, we are going to make use further on one of the simplest possible forms of the wave function, namely we shall try to determine the terms of the more highly excited states with the aid of the united atom model.

With the aid of the united atom model the total energy of the ground state, the dissociation energy, the ionization potential and the equilibrium nuclear separation have already been determined for several molecules with a fairly good accuracy [5] {CH<sub>4</sub>, SiH<sub>4</sub>}, [6] {H<sub>2</sub><sup>+</sup>}, [7] {H<sub>2</sub>}, [8] {H<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>}, [9] {H<sub>2</sub>O, NH<sub>3</sub>}, [10] {HF}, [11] {HO, HO<sup>-</sup>, H<sub>2</sub>O}, etc. Moreover, it was shown in [12] by H. W. JOY and R. G. PARR that with the aid of 24



non-linear parameters the method of the united atom is able to furnish results which surpass the best results obtained by the method of molecular orbitals or by that of valence bond. Our method applies most advantageously to molecules with a certain symmetry, resp. with "atomlike" properties. Since the molecule considered possesses this latter property to a higher degree in an excited state than in the ground state, we can expect good results for the case we investigate.

The Hamiltonian\* of the  $H_2$ -molecule is

$$\begin{aligned}
 H &= -\frac{1}{2}\Delta_1 - \frac{1}{2}\Delta_2 - \frac{1}{r_{a1}} - \frac{1}{r_{a2}} - \frac{1}{r_{b1}} - \frac{1}{r_{b2}} + \frac{1}{r_{12}} + \frac{1}{R} = \\
 &= H_1 + H_2 + \frac{1}{r_{12}} + \frac{1}{R}
 \end{aligned}
 \tag{1}$$

with

$$H_i = -\frac{1}{2}\Delta_i - \frac{1}{r_{ai}} - \frac{1}{r_{bi}}.
 \tag{2}$$

For notations see the Figure.

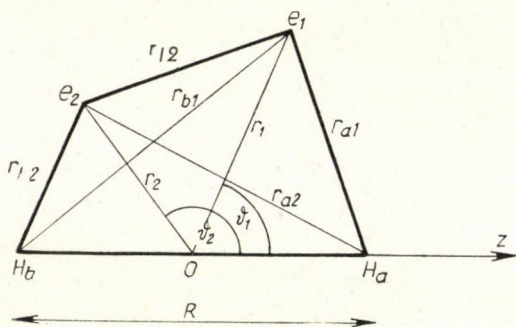


Fig. 1

We are going to build up the total wave function of the system from the normalized hydrogenlike wave functions

$$\psi_{nlm} = R_{nl}(r) Y_{lm}(\vartheta, \varphi),
 \tag{3}$$

\* In what follows, we shall use atomic units throughout, i. e. our units will be  $e$  for the charge (the positive elementary charge),  $a_0$  for the distance (the radius of the first Bohr orbit in the H-atom), and  $e^2/a_0 = 27,205$  eV for the energy.

where  $R$  is the normalized radial wave function, i. e.

$$R_{nl}(r) = - \left\{ \frac{(n-l-1)!}{[(n+l)!]^3 2n} \right\}^{1/2} \left( \frac{2Z}{na_0} \right)^{3/2} e^{-\varrho/2} \varrho^l L_{n+l}^{(2l+1)}(\varrho), \quad (4)$$

$$\varrho = \frac{2Zr}{na_0}$$

and  $L_{n+l}^{(2l+1)}$  is the  $2l + 1$ th derivative of the  $n + l$ th Laguerre's polynomial. Moreover

$$Y_{lm}(\vartheta, \varphi) = \sqrt{\frac{2l+1}{4\pi} \frac{(l-m)!}{(l+m)!}} P_l^m(\cos \vartheta) e^{im\varphi} \quad (5)$$

is the normalized spherical harmonic and

$$P_l^m(x) = \frac{1}{2^l l!} (1-x^2)^{m/2} \frac{d^{l+m}}{dx^{l+m}} (x^2-1)^l \quad (6)$$

the associated Legendre's polynomial, where

$$x = \cos \vartheta.$$

$r$  in (3) and (4) is the distance from the center, i. e. from the central point 0 of the two protons.

For the states of type  $1s\sigma n l \lambda$  ( $n \geq 2$ ) we take the trial wave function in the form

$$\Psi_i^\pm = N_\pm (\psi_{1s}(1) \psi_i(2) \pm \psi_i(1) \psi_{1s}(2)), \quad (7)$$

where

$$N_\pm = \frac{1}{\sqrt{2(1 \pm S_{1s,i}^2)}} \quad (8)$$

with

$$S_{1s,i} = \int \psi_{1s}^*(1) \psi_i(1) dv_1. \quad (9)$$

Here  $i$  denotes the quantum numbers  $n l m$  ( $n \geq 2$ ).  $S_{1s,i}$  is different from 0 only for states with  $i = ns$ , i. e. if the wave function  $\psi_i$  is also spherically symmetrical.

For doubly excited states let be

$$\psi_{ik}^\pm = N'_\pm (\psi_i(1) \psi_k(2) \pm \psi_k(1) \psi_i(2)), \quad (7')$$

where

$$N'_\pm = \frac{1}{\sqrt{2(1 \pm S_{ik}^2)}} \quad (8')$$



with

$$S_{lk} = \int \psi_l(1) \psi_k(1) dv_1. \quad (9')$$

In (7) and in (7') the signs + and — refer to the singlet and to the triplet state, respectively.

For singly excited states the form (7) of the wave function is, of course, only a very rough approximation. It corresponds to our considering the excited  $H_2$  as consisting of a  $H_2^+$  having an inner electron of state  $1s$  which moves in the field of the nuclei, and of an outer electron of quantum state  $nlm$  which underlies the influence of the positive charge screened by the inner electron. This point of view is supported also by the fact that the values of the nuclear separation corresponding to the ground state of the molecule-ion  $H_2^+$  and to the singly excited state of the  $H_2$ -molecule are shown by experiments to be almost identical.

The simplest possibility consists in choosing the parameter  $Z$  of the function  $\psi_{1s}$  and the parameter  $Z'$  of the function  $\psi_i$  to be equal to 1. This means that these parameters are being taken equal to the values they have in the atoms resulting from a splitting up of the molecule  $H_2$ . Thus, of course,  $S_{1s,i} = 0$ , and the functions  $\psi_i^\pm$  describing the excited states and belonging to different values of  $n\lambda$  are orthogonal.

In the case of the wave function  $\psi_{1s}$  of the inner electron this choice is being motivated by the fact that according to computations made both for the molecule-ion  $H_2^+$  and for the  $H_2$ -molecule [6], [7], the parameter of this function lies quite near to this value, despite the fact that the equilibrium nuclear separation is quite different for these two molecules. At the present moment the results obtained for  $H_2^+$  are more important for us, since we consider the excited  $H_2$  as consisting of a  $H_2^+$ -ion and an electron in the orbital  $n\lambda$ .

The choice  $Z' = 1$  for the outer electron is in its turn motivated by the following. As CHEN [13] has shown for the molecule-ion  $H_2^+$ , and HAGSTROM and SHULL [14] for the  $H_2$ -molecule, it is possible to obtain the total energy of these systems with a very good approximation, using only spherically symmetrical wave functions. Clearly, this approximation corresponds physically to the model where the charges of the two protons are smeared uniformly over the surface of a sphere with the radius  $R/2$  and containing the two nuclei. As is known, the potential of a spherically symmetrical charge distribution outside it is exactly as large as that of a point charge in the center. The greater part of the electronic cloud for the electron  $1s$  lies between the two protons. This, as well as the charge, taken in the previous sense, of the two protons outside the spherical surface mentioned, can be replaced by a unit charge lying in the center. Thus, if the outer electron is staying with a great probability in this part of the space, i. e. outside the spherical surface, and this is the case

with excited states, then its wave function can be taken with a good approximation to be hydrogenlike, and so in  $\psi_i$  we can make the choice  $Z' = 1$ .

The energy of the system is

$$E = \int \Psi^* H \Psi dv, \tag{10}$$

resp.

$$E^\pm - \frac{1}{R} = \frac{1}{1 \pm S_{1s,i}^2} \{H_{11} + H_{ii} \pm 2H_{1i} S_{1s,i} + V_{1i1i} \pm V_{1i1i}\} \tag{11}$$

with

$$H_{ij} = \int \psi_i^*(1) H_1 \psi_j(1) dv_1 \tag{12}$$

and

$$V_{ijkl} = \iint \frac{\psi_i^*(1) \psi_j^*(2) \psi_k(1) \psi_l(2)}{r_{12}} dv_1 dv_2. \tag{13}$$

Taking into account (2) we get

$$H_{ij} = E_{ij}^k - L(i, j; a) - L(i, j; b) \tag{12'}$$

with

$$E_{ij}^k = -\frac{1}{2} \int \psi_i(1) \Delta_1 \psi_j(1) dv_1 \tag{14}$$

and

$$L(i, j; a) = \int \psi_i(1) \frac{1}{r_{a1}} \psi_j(1) dv_1. \tag{15}$$

With the aid of the well-known series form

$$\frac{1}{r_a} = \sum_{h=0}^{\infty} \sum_{m=-h}^h \frac{(h-|m|)!}{(h+|m|)!} \frac{r_{<}^h}{r_{>}^{h+1}} P_h^{|m|}(\cos \vartheta) P_h^{|m|}(\cos \vartheta') e^{im(\varphi-\varphi')}. \tag{16}$$

(15) can be given as

$$\begin{aligned} L(i, j; a) &= \\ &= \sum_h \left[ \frac{(h-|m_l-m_{l'}|)!}{(h+|m_l-m_{l'}|)!} \right]^{1/2} c^h (lm_l, l' m_{l'}) g^h(nl, n'l') P_h^{|m_l-m_{l'}|}(\cos \vartheta') e^{i|m_l-m_{l'}|\varphi'}, \end{aligned} \tag{15'}$$

where

$$g^h(nl, n'l') = \int_0^{\infty} R_{nl}^*(r) R_{n'l'}(r) \frac{r_{<}^h}{r_{>}^{h+1}} r^2 dr \tag{17}$$



and

$$c^h(lm_l, l' m_{l'}) = \left[ \frac{(h - |m_l - m_{l'}|)!}{(h + |m_l - m_{l'}|)!} \frac{(2l + 1)(l - |m_l|)!}{(l + |m_l|)!} \frac{(2l' + 1)(l' - |m_{l'}|)!}{(l' + |m_{l'}|)!} \right]^{1/2} \times \\ \times \int_0^\pi P_l^{|m_l|}(\cos \vartheta) P_{l'}^{|m_{l'}|}(\cos \vartheta) P_h^{|m_l - m_{l'}|}(\cos \vartheta) \frac{\sin \vartheta}{2} d\vartheta. \quad (18)$$

Concerning the values of the coefficients  $c^h$ , see e. g. [15].

Making use again of a series of type (16), the  $V_{1il1}$  and  $V_{1iil}$  occurring in (11), i. e. the well-known Coulomb integrals and exchange integrals can be brought into the following form:

$$V_{ijij} = V_{jiji} = \iint \frac{\psi_{nlm}^*(1) \psi_{n'l'm'}^*(2) \psi_{nlm}(1) \psi_{n'l'm'}(2)}{r_{12}} dv_1 dv_2 = \\ = \sum_{h=0}^{\infty} c^h(lm_l, lm_l) c^h(l' m_{l'}, l' m_{l'}) F^h(nl, n' l') \quad (19)$$

and

$$V_{ijjj} = V_{jijj} = \iint \frac{\psi_{nlm}^*(1) \psi_{nlm}^*(2) \psi_{n'l'm'}(1) \psi_{n'l'm'}(2)}{r_{12}} dv_1 dv_2 = \\ = \sum_{h=0}^{\infty} [c^h(lm_l, l' m_{l'})]^2 G^h(nl, n' l'), \quad (20)$$

where

$$F^h(nl, n' l') = \iint R_{nl}^2(r_1) R_{n'l'}^2(r_2) \frac{r_1^h}{r_1^{h+1}} r_1^2 r_2^2 dr_1 dr_2 \quad (21)$$

and

$$G^h(nl, n' l') = \iint R_{nl}(r_1) R_{n'l'}(r_1) R_{nl}(r_2) R_{n'l'}(r_2) \frac{r_1^h}{r_1^{h+1}} r_1^2 r_2^2 dr_1 dr_2. \quad (22)$$

Taking all this into account, we get for the energy of the singly excited states

$$E^\pm = E_{10,10}^k + E_{nl,nl}^k - 2 [L(100,100) + L(nlm_l, nlm_l)] \\ + F^0(10, nl) \pm \sum_{h=0}^{\infty} [c^h(00, lm_l)]^2 G^h(10, nl) + 1/R. \quad (23)$$

The difference between the singlet and the triplet states is

$$\Delta = E^+ - E^- = 2 \sum_{h=0}^{\infty} [c^h(00, lm_l)]^2 G^h(10, nl). \quad (24)$$

We have carried out numerical computations for all the states  $nl\lambda$ , for which

measured values have been available [16], namely for all the states  $n\lambda = 2s\sigma, 2p\sigma, 2p\pi, 3s\sigma, 3p\sigma, 3p\pi, 3d\sigma, 3d\pi, 3d\delta, 4s\sigma, 4p\sigma, 4p\pi, 4d\sigma, 4d\pi, 4d\delta, 4f\sigma, 4f\pi, 5p\pi, 5d\sigma, 5f\sigma, 6p\pi$ .

By virtue of the variational principle the absolute minimum of (10) is always greater than or equal to the energy of the ground state, and it is possible to obtain, also by the variational method, an upper bound to the lowest of the excited states having a special symmetry. The wave functions of higher excited states must be orthogonal to those of lower states.

In the course of the variational process, we have made use of the choice  $Z = Z' = 1$ , already motivated in detail, for the parameters of the functions  $\psi_{1s}$  and  $\psi_{nlm}$ . So only the nuclear separation remains as variational parameter. Our results obtained for the energy, with the corresponding experimental results, are summarized in Table I. In the states considered the experimental value

Table I

The energy calculated with the aid of a wave function of type (7) of the excited state  $1s\ n\lambda$  ( $n \geq 2$ ) of H<sub>2</sub>, and the corresponding experimental energy values [17].

$n\lambda$	$E^+$	$E^-$	$E^+$	$E^-$	$E_{\text{exp}}^+$	$E_{\text{exp}}^-$
	$R/2 = 1$		$R/2 = 0.9$			
2sσ	-0,5383	-0,5822	-0,5555	-0,5993	-0,7086	-0,7274
2pσ	-0,5981	-0,6322	-0,6046	-0,6387	-0,7468	—
2pπ	-0,5583	-0,5925	-0,5712	-0,6053	-0,7087	-0,7283
3sσ	-0,5014	-0,5130	-0,5135	-0,5251	-0,6456	-0,6507
3pσ	-0,5187	-0,5277	-0,5274	-0,5364	—	-0,6537
3pπ	-0,5074	-0,5165	-0,5188	-0,5278	-0,6456	-0,6510
3dσ	-0,5150	-0,5155	-0,5259	-0,5264	-0,6506	-0,6507
3dπ	-0,5146	-0,5151	-0,5249	-0,5254	-0,6494	-0,6496
3dδ	-0,5126	-0,5131	-0,5229	-0,5234	-0,6478	-0,6488
4sσ	-0,4924	-0,4971	-0,5025	-0,5071	-0,6185	—
4pσ	-0,4932	-0,4969	-0,5024	-0,5061	—	(-0,6328)
4pπ	-0,4869	-0,4906	-0,4973	-0,5010	—	(-0,6252)
4dσ	-0,4904	-0,4907	-0,5004	-0,5006	(-0,6200)	(-0,6247)
4dπ	-0,4900	-0,4903	-0,5001	-0,5003	(-0,6238)	(-0,6243)
4dδ	-0,4892	-0,4895	-0,4994	-0,4996	(-0,6186)	(-0,6246)
4fσ	-0,4901	-0,4901	-0,5001	-0,5001	—	(-0,6209)
4fπ	-0,4900	-0,4900	-0,5001	-0,5001	—	(-0,6256)
5pπ	-0,4771	-0,4790	-0,4874	-0,4892	—	(-0,6134)
5dσ	-0,4789	-0,4790	-0,4889	-0,4891	—	(-0,6128)
5fσ	-0,4787	-0,4787	-0,4888	-0,4888	—	(-0,6119)
6pπ	-0,4715	-0,4726	-0,4817	-0,4827	—	(-0,6019)



for the half of the nuclear separation is  $R/2 \sim 1$  and we have given the energy partly for the value 1 and partly for the value 0.9, giving a minimum of energy in the course of the variational process.

For large values of the principal quantum number  $n$  an exact determination of the integrals  $L$  requires an exact numerical calculation up to many decimal places. Since, however, in such cases (4) the radial part of the wave function, is appreciably different from zero only for  $r > R/2$ , the following formula gives a very good approximation:

$$L(nl m_l, n' l' m_{l'}) \sim \sum_{h=0}^{\infty} \left[ \frac{(h - |m_l - m_{l'}|)!}{(h + |m_l - m_{l'}|)!} \right]^{1/2} c^h(l m_l, l' m_{l'}) \int_0^{\infty} R_{nl} R_{n'l'} \frac{(R/2)^h}{r^{h+1}} r^2 dr. \quad (25)$$

Already for  $n = 3$  the difference between the exact and the approximative values of the integrals does not surpass 1—2%. For the cases  $n = 4, 5, 6$  we indicate the energy values computed with the aid of this approximation.

The energy values obtained approximate but roughly the experimental results. There is a difference of about 20%. Of course, making use, as we did, of the very simply constituted wave function (7), we cannot expect to obtain better results.

Besides the singly excited states, there exist also states of  $\text{H}_2$  corresponding to an excitation of both electrons. Not all of these, however, have received an interpretation. We also have carried out the computation corresponding to the state  $(2p\sigma)^2$  given in [16]. The minimum of the energy obtained for  $R/2 = 2.9$  is  $E = -0.4603$ . The corresponding experimental values are  $R/2 = 2.19$  and  $E = 0.6931$ . Clearly, in this case there exists only a singlet state.

As we have already mentioned, taking the wave function in the form (7) corresponds to the conception of the excited  $\text{H}_2$  as consisting of the  $\text{H}_2^+$  molecule-ion, and an outer electron revolving outside it. Clearly, the description of the excited outer electron with the help of a hydrogenlike function yields a much better approximation than the description of the electron of  $\text{H}_2^+$  with the aid of the function  $\psi_{nlm}$ . So we can expect that we shall be able to improve considerably our results by taking the wave function of the electron of the  $\text{H}_2^+$  molecule-ion with greater accuracy. For this ion R. GÁSPÁR [6] has built up the wave function out of one-center functions, making use of hydrogenlike functions  $s, d, g$ . Owing to properties of symmetry, functions  $p$  and  $f$  clearly do not occur. If the  $z$ -axis of the system of coordinates coincides with the molecule axis, then for a linear combination of the functions  $1s, 2s$  and  $3d_z$  the best wave function yielded by the variational principle for the minimum of the energy is

$$\psi = c_1 \psi_{1s}(\xi) + c_2 \psi_{2s}(\xi') + c_3 \psi_{3d}(\xi''), \quad (26)$$

where the parameters of the hydrogenlike functions  $\psi$  are

$$\xi = 1.135, \xi' = 3.6, \xi'' = 6.6. \tag{27}$$

Let now the wave function normed to one and describing the singly excited states of H<sub>2</sub> be

$$\Psi^\pm = \frac{1}{\sqrt{2(1 \pm S^2)}} (\varphi(1) \psi_i(2) \pm \psi_i(1) \varphi(2)), \tag{28}$$

where

$$S = \int \varphi \psi_i dv. \tag{29}$$

The function  $\Psi^\pm$  must be orthogonal to the function  $\varphi(1) \varphi(2)$  describing the ground state of the molecule. In singlet states this is not automatically fulfilled for the cases  $n l \lambda = 2s\sigma, 3s\sigma, 3d\sigma, 4s\sigma, 4d\sigma, 5d\sigma$ .

Using the notations of (12) and (13), the expression for the energy takes on the form

$$E^\pm = \frac{1}{1 \pm S^2} \left\{ H_{\varphi\varphi} \pm 2SH_{\varphi i} + H_{ii} + V_{\varphi i \varphi i} \pm V_{\varphi i i \varphi} + \frac{1}{R} (1 \pm S^2) \right\}. \tag{30}$$

If, on the other hand, we introduce the notations

$$F^h(nl, n'l'; n''l'') = \iint R_{nl}(1) R_{n'l'}(1) R_{n''l''}^2(2) \frac{r_1^h}{r_1^{h+1}} r_1^2 r_2^2 dr_1 dr_2 \tag{31}$$

and

$$G^h(nl, n'l'; n''l'') = \iint R_{nl}(1) R_{n''l''}(1) R_{n'l'}(2) R_{n''l''}^2(2) \frac{r_1^h}{r_1^{h+1}} r_1^2 r_2^2 dr_1 dr_2, \tag{32}$$

we get

$$\begin{aligned} E^\pm = & \frac{1}{1 \pm S^2} \left\{ c_1^2 E_{1,1}^k + 2c_1 c_2 E_{1,2}^k + c_2^2 E_{2,2}^k + c_3^2 E_{3,3}^k - \right. \\ & - 2[c_1^2 L(100,100) + 2c_1 c_2 L(100,200) + 2c_1 c_3 L(100,320) + \\ & + c_2^2 L(200,200) + 2c_2 c_3 L(200,320) + c_3^2 L(320,320)] + \\ & \pm 2S [c_1(E_{1,i}^k - L(100, i; a) - L(100, i; b)) + c_2(E_{2,i}^k - L(200, i; a) - \\ & - L(200, i; b)) + c_3(E_{3,i}^k - L(320, i; a) + L(320, i; b))] + \\ & + E_{i,i}^k - 2 L(i, i) + \tag{31'} \\ & + c_1^2 \sum_h c^h(00,00) c^h(i, i) F^h(10, i) + 2c_1 c_2 \sum_h c^h(00,00) c^h(i, i) F^h(10,20; i) \\ & + c_1 c_3 \sum_h c^h(00,20) c^h(i, i) F^h(10,32; i) + \end{aligned}$$



$$\begin{aligned}
& + c_2^2 \sum_h c^h(00,00) c^h(i, i) F^h(20, i) + 2c_2 c_3 \sum_h c^h(00,20) c^h(i, i) F^h(20,32; i) \\
& + c_3^2 \sum_h c^h(20,20) c^h(i, i) F^h(32, i) + \\
& \pm \left[ c_1^2 \sum_h [c^h(00, i)]^2 G^h(10, i) + 2c_1 c_2 \sum_h [c^h(00, i)]^2 G^h(10,20; i) + \right. \\
& + 2c_1 c_3 \sum_h c^h(00, i) c^h(20, i) G^h(10,32; i) + c_2^2 \sum_h [c^h(00, i)]^2 G^h(20, i) + \\
& + 2c_2 c_3 \sum_h c^h(00, i) c^h(20, i) G^h(20,32; i) + \\
& \left. + c_3^2 \sum_h [c^h(20, i)]^2 G^h(32, i) \right] + 1/R.
\end{aligned}$$

In the following we have effected our concrete computations for the states  $i = 2s\sigma, 2p\sigma, 2p\pi, 3d\sigma, 3d\pi, 3d\delta, 4f\sigma, 4f\pi$ . The overlap integral  $S$  is different from zero only for  $2s\sigma$  and for  $3d\sigma$ .

The numerical results we obtained are given in Table II. Also here, the parameter  $Z'$  of the function  $\psi_i$  has been taken to be equal to 1. Here the value of the half nuclear separation,  $R/2$  has been chosen throughout to be equal to 1, since the concrete shape of the  $\varphi$  occurring in the wave function (28) had been determined for this value. In the case  $n = 4$  for the integral  $L$  we have made use of the approximation earlier mentioned.

Table II

The energy calculated with the aid of a wave function of type (28) of the excited states  $1s\sigma n\lambda$  ( $n \geq 2$ ) of  $H_2$ , and the corresponding experimental energy values [17].

$n\lambda$	$E^+$	$E^-$	$E_{\text{exp}}^+$	$E_{\text{exp}}^-$
$2s\sigma$	-0,5583	-0,6731	-0,7086	-0,7274
$2p\sigma$	-0,7045	-0,7460	-0,7468	—
$2p\pi$	-0,6791	-0,7149	-0,7087	-0,7283
$3d\sigma$	-0,6356	-0,6362	-0,6506	-0,6507
$3d\pi$	-0,6343	-0,6346	-0,6494	-0,6496
$3d\delta$	-0,6331	-0,6334	-0,6478	-0,6488
$4f\sigma$	-0,6078	-0,6078	—	(-0,6209)
$4f\pi$	-0,6078	-0,6078	—	(-0,6256)

In the case  $i = 2s\sigma$ , since the corresponding wave function is not orthogonal to the ground state in the singlet case, variation of the parameter would give us a rough estimate of the ground state, however the results obtained for the fixed parameter value given by us can be regarded as an approximation to the excited state  $1s\sigma 2s\sigma$ .



As is to be seen from the Table, on using a wave function of type (28) we get considerably improved results. The values obtained for the energy show a deviation of a few per cent from the experimental values, a situation satisfactory — in view of the simple functions of one-center type used — also in quantitative respect. As is to be seen, our results improve with increasing  $n$ , as the hydrogenlike property becomes more and more of a reality.

It would clearly be possible to improve our results by taking into account still further terms of the linear combination in  $\varphi$  in (26), i. e. by giving with greater accuracy the wave function of the inner electron, resp. by subjecting to variation in  $\psi_i$  also the value of the parameter  $Z'$ , i. e. by improving the wave function also of the outer electron.

Computations of a similar kind have recently been effected also by HUZINAGA [17]. He takes the wave function of the inner electron to be a linear combination of functions  $1s, 4s, 4d$  and improves his results by varying the parameter of the outer electron. His calculations have been carried out for the case  $n = 2$ .

## LITERATURE

1. V. GUILLEMIN and C. ZENER, *Phys. Rev.*, **34**, 999, 1929.
2. H. M. JAMES, A. S. COOLIDGE and R. D. PRESENT, *J. Chem. Phys.*, **4**, 187, 1936.
3. A. S. COOLIDGE—H. M. JAMES, *J. Chem. Phys.*, **6**, 730, 1938.
4. J. K. L. MACDONALD, *Proc. Roy. Soc. London*, **A136**, 528, 1932.
5. C. CARTER, *Proc. Roy. Soc. London*, **A235**, 321, 1956.
6. R. GÁSPÁR, *Acta Phys. Hung.*, **7**, 151, 1957.
7. R. GÁSPÁR, *Acta Phys. Hung.*, **7**, 447, 1957.
8. K. FUNABASHI and J. L. MAGEE, *J. Chem. Phys.*, **26**, 407, 1957.
9. K. E. BANYARD and N. H. MARCH, *J. Chem. Phys.*, **27**, 977, 1957.
10. R. GÁSPÁR and I. TAMÁSSY-LENTEI, *Acta Phys. Hung.*, **9**, 105, 1958.
11. R. GÁSPÁR and I. TAMÁSSY-LENTEI, *Acta Phys. Hung.*, **10**, 149, 1959.
12. H. W. JOY and R. C. PARR, *J. Chem. Phys.*, **28**, 448, 1958.
13. TIEN CHI CHEN, *J. Chem. Phys.*, **29**, 347, 1958.
14. S. HAGSTROM and H. SHULL, *J. Chem. Phys.*, **30**, 1314, 1959.
15. E. U. CONDON and G. H. SHORTLEY, *The Theory of Atomic Spectra*, Cambridge, At The University Press, 1951.
16. G. HERZBERG, *Molecular Spectra and Molecular Structure. I. Spectra of Diatomic Molecules*, D. Van Nostrand Company, Inc., New York, 1953.
17. S. HUZINAGA, *Prog. Theor. Phys.*, **17**, 102, 1957.

ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗБУЖДЕННЫХ СОСТОЯНИЙ МОЛЕКУЛЫ H<sub>2</sub>  
ПРИ ПОМОЩИ ОБЪЕДИНЕННОЙ МОДЕЛИ АТОМА

И. ТАМАШИ-ЛЕНТЕИ

Резюме

Для определения энергии возбужденных состояний молекулы H<sub>2</sub> наиболее удобной оказывается объединенная модель атома. В отношении однократно возбужденных состояний типа  $1s n l n l$  расчёты проведены в следующих случаях:  $n l l = 2s\sigma, 2p\sigma, 2p\pi, 3s\sigma, 3p\sigma, 3p\pi, 3d\sigma, 3d\pi, 3d\delta, 4s\sigma, 4p\sigma, 4p\pi, 4d\sigma, 4d\pi, 4d\delta, 4f\sigma, 4f\pi, 5p\pi, 5d\sigma, 5f\sigma, 6p\pi$ . В расчётах применяются одноэлектронные волновые функции, концентрированные на центр молекулы. Если волновая функция электрона  $1s\sigma$  рассматривается как комбинация функций  $1s, 2s, 3d$ , результаты, полученные для энергии, хорошо согласуются с опытными данными.





# ZUSAMMENHANG ZWISCHEN DER STRUKTUR UND DEN PHYSIKALISCHEN EIGENSCHAFTEN DES GLASES

## IV. MITTEILUNG

### Die Festigkeit des Glases

Von

I. NÁRAY-SZABÓ und J. LADIK

ZENTRALFORSCHUNGSINSTITUT FÜR CHEMIE DER UNGARISCHEN AKADEMIE DER WISSENSCHAFTEN,  
BUDAPEST

(Vorgelegt von Z. Gyulai — Eingegangen: 10. IV. 1960)

Die Festigkeit von Quarzglas wird aus der Zahl der auf 1 cm<sup>2</sup> fallenden Si—O-Bindungen (die mit Hilfe des Sauerstoffionenvolumens bestimmt wird) und aus dem bekannten Si—O-Abstand elektrostatisch berechnet. Die so errechnete Festigkeit ergibt sich als 2508 kp/mm<sup>2</sup>, sie ist etwas grösser als der bisher gemessene Maximalwert an Quarzglasfäden. Eine Deutung der grossen Festigkeit von dünnen Glasfäden wird gegeben.

Unter den physikalischen Eigenschaften des Glases ist die Festigkeit die komplizierteste. Sie hängt anscheinend nicht von der Zusammensetzung ab, sondern ist viel stärker von anderen Umständen beeinflusst. Leider stehen sehr wenige Daten zur Verfügung, die an Gläsern mit bekannter Zusammensetzung unter vergleichbaren Bedingungen gemessen wurden.

Die Reissfestigkeit von Glas ist im allgemeinen wenigstens zehnmal kleiner als die Bruchfestigkeit. Sie hängt aber in viel grösserem Masse von der Gestalt und Grösse der untersuchten Proben, von der Zeit der Messung und noch von sehr vielen anderen Umständen ab, doch sind die Ergebnisse nicht mit genügender Genauigkeit reproduzierbar. Von den Autoren wird meistens die Zusammensetzung der untersuchten Proben nicht mitgeteilt.

Die folgenden Tatsachen sind besonders auffallend:

1. Die Festigkeit (6—12 kp/mm<sup>2</sup>) ist verglichen mit der von Metallen gering und zeigt an verschiedenen Proben eines Glases von konstanter Zusammensetzung eine sehr grosse Streuung.

2. Die Reissfestigkeit wächst mit Abnahme des Durchmessers, sie ist bei Fäden von einigen  $\mu$  Durchmesser fast 100-mal so gross wie bei etwa 1 cm starken Proben.

3. Die Festigkeit eines dünnen Glasfadens ist umso grösser, je kürzer der Faden ist.

4. Die Festigkeit hängt in sehr hohem Masse von dem Zustand der Glasoberfläche ab; durch Entfernen der Oberflächenschicht wird die Festigkeit etwa dreifach erhöht.

5. Bei einer längeren Belastung findet man eine geringere Festigkeit als bei einer kürzer währenden.



Zur Deutung dieser und anderer Erscheinungen stellte GRIFFITH [1] 1920 eine Theorie auf, wonach die wahre Festigkeit des Glases viel grösser ist als die durch Messung erhaltbare. Das kommt daher, dass es im Glas zahlreiche, unsichtbare Risse gibt; diese verringern einerseits den wahren Querschnitt, andererseits wird die Spannung an ihren Rändern vervielfacht und daher kann hier das Zerreißen leicht beginnen, das dann durch das ganze Glasstück läuft (im Gegensatz zu den Metallen, wo die Zerreißen an den Korngrenzen aufgehalten wird).

GRIFFITH hat aus seinen Versuchen eine Reissfestigkeit von etwa 1000 kp/mm<sup>2</sup> für den Durchmesser 0 extrapoliert. OROWAN [2] gelangte von einem ganz anderen, mechanischen Ausgangspunkt aus zu einem ähnlichen Wert.

ANDRADE und TSIEN [3] versuchten, diese Risse experimentelle nachzuweisen. Sie behandelten ihre Proben in Vakuum bei 350° C mit Natriumdampf, wodurch die Risse im Mikroskop sichtbar wurden. An frischer Oberfläche waren wenige Risse vorhanden, deren Zahl später zunahm.

Neuerdings wurde von GORDON, MARSH und PARRATT [4] diese Versuchstechnik ausgebaut; saubere und unberührte Glasoberflächen wurden bei 400° C etwa 4 Stunden lang durch Natriumdampf von etwa 0,1 mm Hg-Druck behandelt (»dekoriert«). So konnten sie die Oberflächenrisse an Gläsern aller Art nachweisen und in schönen Mikrofotografien festhalten. Die erhaltenen Netzwerke sind meistens einander ähnlich. Die ätzende Wirkung des Natriums ist bei Quarzglas stärker als bei gemischten Oxydgläsern. An der Aussenseite eines gebogenen Glasfadens wurden von den Autoren viel mehr Risse gefunden als an der Innenseite. Die Risse der gezogenen Aussenseite verlaufen grösstenteils normal und die der gestauchten Innenseite parallel zur Fadenachse. Sie stellten auch dünne (nicht mehr als 1000 Å dicke) Membrane her, indem sie ein am Ende geschlossenes, glühendes Glasrohr plötzlich aufbliesen, und es bersten liessen. Diese dünnen Membrane liessen im Elektronenmikroskop bei einer Auflösung von 75 Å weder Kriställchen, noch Risse noch Struktur erkennen. Es wurde versucht, die Membrane im Elektronenmikroskop durch Erhitzen zu devitrifizieren, doch verursachte das Schwierigkeiten, obzwar selbst die Liquidus-Temperatur überschritten worden war. Katalysatoren wie HF, LiOH, Asbestpulver haben dagegen eine schnelle Kristallisation herbeigeführt.

Aus diesen Tatsachen folgern die Autoren, dass das System der Risse schon vor der Dekoration vorhanden ist. Zwei Ursachen ihrer Entstehung sind die Abrasion und die Devitrifikation (eine Rissbildung durch die letztere Ursache wurde zwar an Natronglas nicht beobachtet, desto mehr an Quarzglas). Es ist wahrscheinlich, dass die Breite der Risse beim Ursprung 100—200 Å, ihre Tiefe 1000 Å ist; nach der Behandlung mit Natriumdampf wächst die Tiefe zu 1—10  $\mu$  an.

Man muss bemerken, dass auch andere Beobachtungen darauf hinweisen, dass die Festigkeit dünner Glasfäden nicht nur von dem Durchmesser, sondern



auch von den Umständen der Fadenziehung abhängt. OTTO [5] hat nachgewiesen, dass die Festigkeit von unter gleichen Umständen gezogenen Fäden fast unabhängig von der Dicke ist, dagegen stark von der Temperatur des gezogenen Glases abhängt und mit dieser stark anwächst. Die Länge der von ihm untersuchten Glasfäden war immer die gleiche ( $1 \text{ in} = 25,6 \text{ mm}$ ). Ähnliche Beobachtungen werden auch von THOMAS [6] mitgeteilt.

Die wahre Festigkeit des Glases ist also nachweisbar um vieles grösser als die gemessene. Daher ist es wichtig, die wahre Festigkeit auf einem anderen, unmittelbaren Wege zu berechnen, als dies GRIFFITH bzw. OROWAN taten. Die Berechnung kann auf elektrostatischem Wege erfolgen, wozu die Kenntnis der durch einen  $\text{cm}^2$  Glasquerschnitt gehenden Si—O- (und anderen) Bindungen eine Möglichkeit gibt. Dies kann aus dem Sauerstoffionenvolumen  $v$  berechnet werden. Betreffs der Bestimmung von  $v$  verweisen wir auf frühere Mitteilungen dieser Reihe [7, 8].

Es wurde bereits von GRIFFITH nachgewiesen, dass die Zugfestigkeit feiner Glasfäden die des Glases mit grösseren Durchmessern bei weitem übertrifft. So fand er z. B. bei einem Glasfaden mit 69,2%  $\text{SiO}_2$ , 0,9%  $\text{Na}_2\text{O}$ , 12,0%  $\text{K}_2\text{O}$ , 11,8%  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 4,5%  $\text{CaO}$  und 0,9%  $\text{MnO}$  und einem Durchmesser von  $0,165 \cdot 10^{-3} \text{ in} = 4,08 \mu$  eine Festigkeit von  $350 \text{ kp/mm}^2$ . ANDEREGG [9] hat noch grössere Festigkeiten an feinen Quarzglasfäden gemessen; die grösste von ihm gefundene Festigkeit war etwa  $2460 \text{ kp/mm}^2$ , was die theoretischen Festigkeiten von GRIFFITH bzw. OROWAN weit übertrifft.

Nun kann aus dem Sauerstoffionenvolumen  $v$  eine Fläche des ein  $\text{O}^{2-}$ -Ion enthaltenden Würfels und daraus die Zahl der  $\text{O}^{2-}$ -Ionen im Querschnitt von  $1 \text{ cm}^2$  des Quarzglases berechnet werden. Im Quarzglas bildet jedes  $\text{O}^{2-}$ -Ion zwischen zwei  $\text{Si}^{4+}$ -Ionen eine Brücke. In Metalloxyd enthaltenden Gläsern sind ebenfalls Me—O-Bindungen vorhanden, die natürlich viel schwächer sind.

Es sei in einem Silikatglas die durchschnittliche Zahl der zum  $\text{Si}^{4+}$ -Ion gehörenden Brücken-Sauerstoffionen  $y$ , die der Nicht-Brückensauerstoffionen\*  $x$ , so ist offenbar

$$x + y = 4,$$

da in allen Silikaten  $\text{SiO}_4$ -Tetraeder vorhanden sind, die Koordinationszahl von  $\text{Si}^{4+}$  beträgt also 4. Im Glas ist die Zahl der Sauerstoffionen pro netzbildendes Ion  $R = \text{O}/(\text{Si} + \text{B} + \dots)$ , im Quarzglas also  $R = \text{O}/\text{Si} = 2$ . Jedes nichtbrückenbildende  $\text{O}^{2-}$ -Ion gehört nur zu einem  $\text{Si}^{4+}$ -Ion, die brückenbildenden  $\text{O}^{2-}$ -Ionen gehören aber nur zur Hälfte zu einem  $\text{Si}^{4+}$ -Ion, es ist also

$$R = x + y/2$$

oder

$$y = 8 - 2R.$$

\*  $x$  und  $y$  sind in allgemeinen keine ganze Zahlen.



Der Quotient der Brückensauerstoffionen und sämtlicher Sauerstoffionen ist

$$y/(x + y) = 2 - R/2.$$

Da eine Fläche der ein Sauerstoffion enthaltenden Würfel  $v^{2/3}$  ist, beträgt die Zahl der auf  $1 \text{ cm}^2$  fallenden Sauerstoffionen  $1/v^{2/3}$  und die der auf  $1 \text{ cm}^2$  fallenden Brückensauerstoffionen

$$n = \frac{2 - R/2}{v^{2/3}}.$$

Die Festigkeit ist bei beliebigen Gläsern proportional mit  $n$ , vorausgesetzt, dass sie aus einem unendlichen Tetraedernetz bestehen. Die Festigkeit ist also umso grösser, je kleiner  $v$  und  $R$  ist. Die letztere Zahl ist unter allen Silikatgläsern (die kein Be, B oder Al enthalten) bei Quarzglas am kleinsten, wo auch  $v$  klein ist. Daher muss die Festigkeit von Quarzglas hoch sein, was mit der Erfahrung im Einklang steht.

Die wahre Festigkeit des Quarzglases lässt sich elektrostatisch berechnen. Zwischen dem  $\text{Si}^{4+}$  und dem  $\text{O}^{2-}$ -Ion, deren Abstand bekanntlich  $r = 1,60 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$  ist, besteht die COULOMBSche Anziehungskraft  $- 8e^2/r^2$ . KOSSEL [10] hat die zur Trennung der Ionen notwendige Arbeit berechnet, indem er die anziehenden und abstossenden elektrostatischen Kräfte zwischen dem  $\text{Si}^{4+}$  und den 4  $\text{O}^{2-}$ -Ionen einfach summiert hat. Wenn sich ein vierwertiges zentrales Kation und vier zweiwertige Anionen bis zu einem Abstand von  $r$  einander nähern, so wird  $-17,32e^2/r$  Energie frei. Wird dagegen das  $\text{Si}^{4+}$ -Ion nur durch drei zweiwertige Anionen umgeben, so beträgt die freiwerdende Energie  $-17,08e^2/r$ . Die Energiedifferenz zwischen der vierfachen und der dreifachen Koordination ist also  $-0,24e^2/r$ , oder in erg. ausgedrückt

$$-0,24e^2/r = -\frac{0,24 (4,80 \cdot 10^{-10} \text{ elst. Einh.})^2}{1,60 \cdot 10^{-8} \text{ cm}} = -3,456 \cdot 10^{-12} \text{ erg.}$$

Im Kristall bzw. im nichtperiodischen Netzwerk des Glases wird für die Potentialfunktion zwischen zwei Ionen näherungsweise eine Potentialfunktion eines zweiatomigen Moleküls mit dem bekannten qualitativen Ablauf (Fig. 1) gültig sein. Im Minimum der Energie (A) herrscht Gleichgewicht; bei Anlegung einer ziehenden Kraft vergrössert sich der Abstand, bis an der Stelle der Inflexion der Kurve (Punkt B, Fig. 1) Bruch der Bindung Si—O erfolgt.

Nehmen wir das Potential des pseudo-zweiatomigen Moleküls  $\text{SiO}_3\text{—O}$  näherungsweise in der Form der MORSE-Funktion [11],

$$U(r - r_e) = D_e(1 - e^{-\beta(r - r_e)})^2, \quad (1)$$

an, wo  $U$  die Energie,  $r_e$  den Kernabstand im Gleichgewicht,  $r$  den laufenden Kernabstand,  $D_e$  die Bindungsenergie beim Gleichgewichtsabstand bedeuten und  $\beta$  eine Konstante ist. Da im Inflexionspunkt  $d^2U/dr^2 = 0$  ist, ergibt sich aus (1)

$$2e^{-\beta(r_i-r_e)} = 2, \quad (2)$$

wo jetzt  $r_i$  der Kernabstand im Inflexionspunkt ist. Die Kraft daselbst beträgt

$$F_i = - \left[ \frac{dU}{dr} \right]_{r=r_i} = [2\beta D_e(1 - e^{-\beta(r-r_e)})e^{-\beta(r-r_e)}]_{r=r_i}. \quad (3)$$

Die Zahlenwerte in dieser Gleichung sind bekannt:  $r_e = 1,60 \cdot 10^{-8}$  cm,

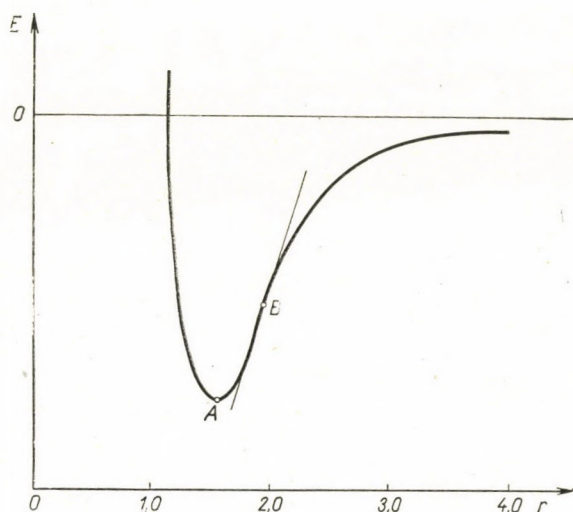


Fig. 1

$D_e = -0,24e^2/1,60 \cdot 10^{-8} = -3,456 \cdot 10^{-12}$  erg =  $-1,74 \cdot 10^4$  cm $^{-1} \cdot hc$ ; nur  $\beta$  muss man berechnen. Dazu dient die folgende Gleichung [11]:

$$\beta = 1,2177 \cdot 10^7 \omega_e \sqrt{\mu_A/D_e}, \quad (4)$$

wo  $\mu_A$  in Atomgewichtseinheiten und  $\omega_e$ , bzw.  $D_e$  in cm $^{-1}$  Einheiten zu substituieren ist.  $\mu_A$  ist beim  $^{28}\text{Si}^{16}\text{O}_3$ - $^{16}\text{O}$ -Molekül 13,22 in Atomgewichtseinheiten und  $\omega_e$ , die Frequenz der Grundschiwingung, steht mit  $D_e$  im Zusammenhang

$$D_e = \frac{\omega_e^2}{4\omega_e x_e} \quad (5)$$

( $x_e$ : Anharmonizitätsfaktor der Schwingung;  $x_e$  wurde beim  $^{28}\text{Si}^{16}\text{O}$ -Molekül zu  $4,87 \cdot 10^{-3}$  gefunden [(11a)].  $\omega_e$  ergibt sich aus (5) zu 339 cm $^{-1}$  und  $\beta$  aus (4) zu



$1,14 \cdot 10^8$ . Mit den Werten von  $\beta$  und  $D_e$  und mit Berücksichtigung von (2) ergibt sich

$$F_i = 2 \cdot 1,14 \cdot 10^8 \cdot 3,546 \cdot 10^{-12} (1 - 0,5) \cdot 0,5 = 1,97 \cdot 10^{-4} \text{ dyn}$$

pro Si—O-Bindung.

Die Festigkeit des Quarzglasfadens pro  $\text{cm}^2$  beträgt also  $1/v^{2,3}$ -mal so viel, d. h.  $1,97 \cdot 10^{-4} \text{ dyn} (22,7 \cdot 10^{-24})^{-2/3} \text{ cm}^{-2} = 2,463 \cdot 10^{11} \text{ dyn} \cdot \text{cm}^{-2}$  oder  $2508 \text{ kp/mm}^2$ .

Wir erhielten also einen Wert, der etwas grösser ist als der experimentell (in einem Fall) beobachtete Höchstwert  $2460 \text{ kp/mm}^2$ . Ausser den erheblichen Versuchsfehlern muss man natürlich beachten, dass unsere Ableitung auf völlig elektrostatische Bindungen basiert ist, obzwar in der Tat diese Bindungen teilweise kovalent sind. Die Differenz des beobachteten Höchstwertes und des hier berechneten Wertes ist etwa 2%.

Natürlich ist die Festigkeit der meisten Quarzglasfäden bedeutend geringer als die hier berechnete, da diese theoretische Zahl einen Maximalwert darstellt und die Fehler der Struktur (bei Gläsern in erster Linie die »GRIF-FITH-cracks«) diesen Wert herabsetzen. Heute kann die Existenz dieser Risse als experimentell bewiesen gelten und sogar ihre Verteilung entspricht den Erwartungen [4]. Bei dem Fadenziehen ist die Abkühlungsgeschwindigkeit äusserst hoch, was die Ausbildung der Risse verhindert; andererseits orientieren sich etwaige Risse beim Ziehen parallel zur Fadenachse, wodurch ihr Einfluss auf die Ziehfestigkeit aufgehoben wird.

Es werden aus Spezialgläsern Fäden von einigen  $\mu$  Durchmesser industriell hergestellt, ihre Festigkeit beträgt bis  $700 \text{ kp/mm}^2$ , ist also bedeutend grösser als die an Metalldrähten maximal gemessene Festigkeit (bei Wolfram  $400 \text{ kp/mm}^2$ ). Es erübrigt sich, an dieser Stelle die praktische Wichtigkeit dieser Tatsache zu erörtern.

Die Festigkeit natürlicher, dünner Asbestfasern wurde von ZUKOWSKI und GAZE [12] untersucht; sie fanden einen Maximalwert von etwa  $600 \text{ kp/mm}^2$  bei Krokydolith (Cape Colony); auch hier nimmt die Festigkeit mit zunehmender Länge der Faser ab. Die Struktur der Asbestminerale ist bekannt, sie enthalten unendliche  $(\text{SiO}_3)$ -Ketten, die parallel der Faserachse laufen. Im Quarzglas sind diese Ketten seitlich durch gemeinsame Sauerstoffionen verbunden.

Es ergibt sich die Frage, warum das Glas immer schwache Stellen enthält, die die Festigkeit so erheblich verringern. Das Vorhandensein solcher schwachen Stellen scheint eine allgemeine Eigenschaft der Materie zu sein, da die theoretisch berechenbaren Festigkeiten auch bei anderen Stoffklassen; z. B. bei Metallen, nicht erreichbar sind. Es gibt aber die sog. »whiskers«, d. h. sehr dünne Metallfäden, die manchmal an Einkristallen gebildet werden und



eine das gewöhnliche Metall weit überragende Festigkeit besitzen. Z. GYULAI [13] hat die Festigkeit sehr dünner NaCl-Fäden bestimmt, die bei 1  $\mu$  Durchmesser ebenfalls überraschend gross gefunden wurde, etwa 120 kp/mm<sup>2</sup> gegenüber etwa 2 kp/mm<sup>2</sup> an Einkristallen. Die Schwachstellen der Metalle und Salze sind allerdings auch anderer Natur.

Die schwachen Stellen im Glas können verschiedener Art sein. Bei Gläsern mit  $R$  zwischen 2,00—2,50 gibt es Tetraederschichten mit der Zusammensetzung  $\text{Si}_2\text{O}_5$ , die hie und da durch gemeinsame Sauerstoffionen verknüpft sind. In gewissen Kristallen, z. B. im Glimmer, sind diese Si—O-Schichten durch Kaliumionen zusammengehalten, die Stärke der K—O-Bindung ist aber viel geringer als die der Si—O-Bindung (sie beträgt nur 9,2% derselben). Es kann sogar vorkommen, dass sich zwei solche  $\text{Si}_2\text{O}_5$ -Schichten ohne dazwischenliegenden Kationen aneinander schmiegen und nur durch Van der Waals-Kräfte zusammengehalten werden. Die Verringerung der Festigkeit rührt nicht nur von der Querschnittverringerung her, sondern noch mehr von der »stress multiplication« am Rand der  $\text{Si}_2\text{O}_5$ -Schichten. Im Quarzglas, dessen Zusammensetzung  $\text{Si}_2\text{O}_5$ -Schichten nicht erlaubt, kann man Doppelschichten  $\text{Si}_4\text{O}_8$  annehmen, die aus zwei  $\text{Si}_2\text{O}_5$ -Schichten dadurch entstehen, da sie durch gemeinsame  $\text{O}^{2-}$ -Ionen der gegenüberliegenden Tetraederspitzen verbunden sind; solche Schichten kommen z. B. im  $\alpha$ -Celsian vor [14].

Elektronenmikroskopische Aufnahmen von Glas [15] zeigen, dass die Dichte in Bereichen von etwa 100—200 Å schwankt; diese Erscheinung ist zwar noch nicht aufgeklärt, sie bildet aber kein Argument gegen die Annahme eines nichtperiodischen Tetraedernetzwerkes.

## LITERATUR

1. A. A. GRIFFITH, *Trans. Roy. Soc. A* **221**, 163, 1920.
2. E. OROWAN, *Inst. Eng. Shipbuild. Scotl.*, **49**, 165, 1945—6.
3. E. N. da C. ANDRADE und L. C. TSIEN, *Proc. Roy. Soc., A* **159**, 346, 1937.
4. J. E. GORDON, D. M. MARSH und M. E. M. L. PARRATT, *Proc. Roy. Soc., A* **249**, 65, 1959.
5. W. H. OTTO, *J. Am. Ceram. Soc.*, **38**, 122, 1955.
6. W. F. THOMAS, *Nature*, **181**, 1006, 1958.
7. I. NÁRAY-SZABÓ, *Acta Phys. Hung.*, **8**, 37, 1957.
8. I. NÁRAY-SZABÓ, *Acta Phys. Hung.*, **9**, 151, 1958.
9. F. O. ANDEREGG, *Ind. Eng. Chem.*, **31**, 290, 1939.
10. W. KOSSEL, *Ann. Phys.*, **49**, 4, 330 1916, (s. auch J. KETELAAR, *Chemical Constitution*, Elsevier Publ. Co., Amsterdam 1953, S. 54.)
11. G. HERZBERG, *Molecular Spectra and Molecular Structure, I., Spectra of Diatomic Molecules*. ungarische Ausgabe, Budapest, 1956, S. 110—111.
- 11.a G. HERZBERG, *loc. cit.*, S. 556.
12. R. ZUKOWSKI und R. GAZE, *Nature*, **183**, 35, 1959.
13. Z. GYULAI, *Z. Phys.*, **138**, 317, 1954.
14. T. ITO, *X-Ray Studies on Polymorphism*, Maruzen, Tokyo, 1950, S. 19.
15. A. F. PREBUS und J. W. MICHENER, *Ind. Eng. Chem.*, **46**, 147, 1954.



ЗАВИСИМОСТЬ МЕЖДУ СТРУКТУРОЙ И ФИЗИЧЕСКИМИ СВОЙСТВАМИ  
СТЕКЛА. IV. ПРОЧНОСТЬ СТЕКЛА

И. НАРАИ—САБО и Й. ЛАДИК

## Резюме

Структура кварцевого стекла вычисляется электростатически из числа связи Si—O, приходящегося на  $1 \text{ см}^2$  (что определяется на основе объема иона кислорода), и известного расстояния Si—O. Величина полученной таким образом прочности составляет  $2508 \text{ кп/мм}^2$ , что находится в наилучшем согласии с максимальной прочностью, измеренной по настоящее время на кварцевых стеклянных нитях. Дается объяснение высокой прочности тонких стеклянных нитей.

# ON THE SIMULTANEOUS DISTRIBUTION OF THE SAGITTAS OF A TRACK IN EMULSION IN THE CASE OF BACK GROUND NOISE

By

L. JÁNOSSY

CENTRAL RESEARCH INSTITUTE OF PHYSICS, BUDAPEST

(Received 4. V. 1960)

A simple method is given for evaluating the simultaneous distribution function of sagittas of a track in emulsion in the case of Coulomb scattering only and also when back ground noise is present. The expression thus obtained will be made use of in a subsequent paper for the maximum likelihood determination of the scattering parameters of such a track.

§ 1. In a previous paper [1] we have dealt with the determination of the scattering constant of a track in emulsion using the maximum likelihood method. So as to extend the method to tracks where the back ground noise is not negligible it is necessary to have an explicit expression for the simultaneous distribution of sagittas in the case of back ground.

In the present paper we give a method much simpler than that used previously by us or other authors [2, 3] for the determination of the distribution of the sagittas without back ground and further we extend the method to the case where back ground is also present. In a subsequent paper using the results obtained here, we shall give the maximum likelihood determination of both scattering constant and noise level; we shall then also give a practical method which gives an accuracy not much inferior to the maximum likelihood determination, which method appears to be simple enough for practical use.

§ 2. We proceed thus to give a simple method for the determination of the distribution of the sagittas of a track without back ground noise. As a first step we determine the distribution of the values of transversal scatter in  $N$  points of a track.

We consider a particle passing through an emulsion and giving rise to a track which does not deviate very much from a straight line. A system of coordinates may be introduced so that the track passes through the origin  $X = 0$ ,  $Y = 0$  and does not deviate strongly from the  $X$ -axis. We shall consider the projection of the track on to the  $X - Y$ -plane and select  $N + 2$  points with equidistant  $X$ -coordinates:

$$X_\nu = \nu s, \quad \nu = 0, 1, 2, \dots, N + 1. \quad (1)$$

Presently we determine the simultaneous distribution of the  $Y$ -coordinates of the points defined by (1) which we shall denote

$$Y_1, Y_2, \dots, Y_{N+1}.$$



The  $Y$ -coordinate of the initial point should be

$$Y_0 = 0.$$

§ 3. The distribution function of the  $Y_\nu$ ,  $\nu = 1, 2, \dots, N + 1$  may be derived from the probability distribution of the elementary act. We denote the probability density of a collision taking place in the emulsion at a depth  $X$  by  $a(X)$ . In many cases we can suppose

$$a(X) = a = \text{const.}$$

$a(X)$  must be supposed to depend upon  $X$  if the absorber is inhomogeneous. However, even in a homogeneous absorber the probability of a collision may still be a function of the energy  $E$  of the particle; the energy  $E$  in its turn may be supposed to vary continuously with  $X$  and in such a way  $a$  may depend on  $X$  through the dependence of  $E$  upon  $X$ . If we put thus

$$a(X) = \bar{a}(E(X)),$$

where  $\bar{a}(E)$  is the collision density for a particle of energy  $E$ , we take into account the average loss of energy but neglect fluctuations of it.

We shall denote further by  $\varphi(X; \vartheta)$  the probability density for a scattering process to occur at the depth  $X$  through an angle the projection of which upon the  $X - Y$ -plane is  $\vartheta$ . For the dependence of  $\varphi(X; \vartheta)$  upon  $X$  we may repeat the remarks made in connection with  $a(X)$ . The density  $\varphi(X; \vartheta)$  refers to the projected angles of scatter in a single collision — thus we suppose

$$\int \varphi(X; \vartheta) d\vartheta = 1.$$

Furthermore, because of symmetry we may suppose

$$\varphi(X; \vartheta) = \varphi(X; -\vartheta),$$

thus the expected value of the angle  $\vartheta$  in one collision is

$$\langle \vartheta \rangle = 0, \quad (2)$$

and the scatter of  $\vartheta$  shall be denoted

$$\langle (\delta\vartheta)^2 \rangle = \int \vartheta^2 \varphi(x; \vartheta) d\vartheta = \kappa^2(\vartheta). \quad (3)$$

We shall also make use of the Laplace transform of  $\vartheta$ , namely

$$L(x; \lambda) = \int e^{\vartheta\lambda} \varphi(x; \vartheta) d\vartheta. \quad (4)$$

§ 4. If a particle passing through the emulsion suffers a collision near the  $X$ -axis in a point with  $X = \xi$ , then owing to this collision the  $Y$ -coordinates of the points lying further down along the  $X$ -axis will be affected.

If the angle through which the particle is scattered in this single collision is denoted by  $\vartheta$ , we obtain contributions  $y_\nu$  to the values  $Y_\nu$  equal to

$$y_\nu = \begin{cases} (X_\nu - \xi)\vartheta, & \text{if } X_\nu > \xi, \\ 0, & \text{if } X_\nu < \xi, \end{cases}$$

where we suppose the angle to be sufficiently small so that

$$\vartheta \sim \sin \vartheta \sim \text{tg } \vartheta$$

can be supposed. If the particle on its way through the emulsion is scattered  $k$  times in points with  $X$ -coordinates  $\xi_1, \xi_2, \dots, \xi_k$  through angles  $\vartheta_1, \vartheta_2, \dots, \vartheta_k$ , then the  $Y_\nu$ -coordinates will be given by

$$Y_\nu = \sum_{K=0}^k y_\nu^{(K)} + \vartheta_0 X_\nu, \quad \nu = 0, 1, 2, \dots, N+1, \quad (5)$$

where

$$y_\nu^{(K)} = \Delta(X_\nu - \xi_K) \vartheta_K, \quad K = 0, 1, 2, \dots, k$$

and

$$\Delta(x) = \begin{cases} 0, & x < 0, \\ x, & x > 0. \end{cases}$$

Further,  $\xi_0 = 0$ , and  $\vartheta_0$  is the angle between the projected track and the  $X$ -axis in the initial point

$$X_0 = 0, \quad Y_0 = 0.$$

§ 5. So as to determine the simultaneous distribution of the  $Y_\nu$  we may represent the collisions of a particle as points in the  $\xi-\vartheta$  plane. Divide this plane into a very large number of very small sections  $\Delta\xi \Delta\vartheta$ , so that the  $\lambda\mu$ th interval contains values

$$\begin{aligned} \xi_\mu < \xi < \xi_{\mu+1}, \\ \vartheta_\lambda < \vartheta < \vartheta_{\lambda+1}. \end{aligned} \quad (6)$$

The contribution from the  $\lambda\mu$ th interval to the values of  $Y$  may be written  $y_\nu^{(\lambda\mu)}$  and thus we may write in place of (5)

$$Y_\nu = \sum_{\lambda\mu} y_\nu^{(\lambda\mu)} + \vartheta_0 X_\nu, \quad \nu = 1, 2, \dots \quad (7)$$

If the intervals (6) are very small, then most of them will contain no collisions and most of the  $y_\nu^{(\lambda\mu)}$  will be zero.



The probability for a collision to take place inside a particular interval  $\lambda\mu$  is given by

$$P_{\lambda\mu} = a(\xi_\mu) \varphi(\xi_\mu; \vartheta_\lambda) \Delta\xi_\mu \Delta\vartheta_\lambda, \quad (8)$$

where  $\Delta\xi_\mu = \xi_{\mu+1} - \xi_\mu$ ,  $\Delta\vartheta_\lambda = \vartheta_{\lambda+1} - \vartheta_\lambda$ , if we neglect terms of higher order in  $\Delta\xi_\mu$  or  $\Delta\vartheta_\lambda$ .

If there is one collision only in the  $\lambda\mu$ th interval, then the  $y_\nu^{(\lambda\mu)}$  (neglecting terms of higher order in  $\Delta\xi_\mu, \Delta\vartheta_\lambda$ ) take up values

$$Y_\nu^{(\lambda\mu)} = \Delta(X_\nu - \xi_\mu) \vartheta_\lambda. \quad (9)$$

The probability of no collision inside the  $\lambda\mu$ th interval is equal to  $1 - P_{\lambda\mu}$ , thus according to (8) this probability is very large. The probability of more than one collision is of the order of  $(\Delta\xi_\mu \Delta\vartheta_\lambda)^2$  and we shall neglect the possibility. The distribution of  $y_\nu^{(\lambda\mu)}$  (for fixed  $\lambda, \mu, \nu$ ) can thus be written, when neglecting higher order terms,

$$P_{\lambda\mu\nu}(y_\nu^{(\lambda\mu)}) = \delta(y_\nu^{(\lambda\mu)}) (1 - P_{\lambda\mu}) + \delta(y_\nu^{(\lambda\mu)} - Y_\nu^{(\lambda\mu)}) P_{\lambda\mu},$$

where  $\delta(y)$  is the usual Dirac  $\delta$ -function.

We are interested in the simultaneous distribution of the  $N$  values of  $y_\nu^{(\lambda\mu)}$ . It is convenient to introduce vectors

$$\begin{aligned} \mathbf{y}^{(\lambda\mu)} &= y_1^{(\lambda\mu)}, y_2^{(\lambda\mu)}, \dots, y_{N+1}^{(\lambda\mu)}, \\ \mathbf{Y}^{(\lambda\mu)} &= Y_1^{(\lambda\mu)}, Y_2^{(\lambda\mu)}, \dots, Y_{N+1}^{(\lambda\mu)}. \end{aligned}$$

The simultaneous distribution of the components of  $\mathbf{y}^{(\lambda\mu)}$  can be written

$$P_{\lambda\mu}(\mathbf{y}^{(\lambda\mu)}) = \delta(\mathbf{y}^{(\lambda\mu)}) (1 - P_{\lambda\mu}) + \delta(\mathbf{y}^{(\lambda\mu)} - \mathbf{Y}^{(\lambda\mu)}) P_{\lambda\mu}, \quad (10)$$

where the  $\delta$ -function applied to a vector is supposed to be given by

$$\delta(\mathbf{y}) = \delta(y_1) \delta(y_2) \dots \delta(y_{N+1}),$$

i.e. by the product of the  $\delta$ -functions applied to the components of the vector.

The generating function of the distribution (10) can be written

$$G_{\lambda\mu}(\mathbf{v}) = \int e^{\mathbf{v}\mathbf{y}} P_{\lambda\mu}(\mathbf{y}) d\mathbf{y}, \quad (11)$$

where we use the notation

$$\mathbf{v}\mathbf{y} = \sum_{\nu=1}^{N+1} v_\nu y_\nu,$$

and

$$\mathbf{v} = v_1, v_2, \dots, v_{N+1},$$

are the  $N$  transformation parameters relating to the components of  $\mathbf{y}$ .

Introducing (10) into (11) we find

$$G_{\lambda\mu}(\mathbf{v}) = 1 + P_{\lambda\mu}(e^{\mathbf{v}\mathbf{y}^{(\lambda\mu)}} - 1).$$

§ 6. The vectors  $\mathbf{y}^{(\lambda\mu)}$  for different values of  $\lambda\mu$  are independent. (The components  $y_v^{(\lambda\mu)}$  of one vector  $\mathbf{y}^{(\lambda\mu)}$  are not independent of each other, on the contrary they are strongly related to each other, however, this is not important.) As the vector

$$\mathbf{Y} = Y_1, Y_2, \dots, Y_{N+1}$$

is obtained as the sum of the statistically independent vectors  $\mathbf{y}^{(\lambda\mu)}$ , the simultaneous distribution  $P(\mathbf{Y})$  of the components of the vector  $\mathbf{Y}$  is obtained as the folding of the individual distributions, thus

$$P(\mathbf{Y}) = P_{11}(\mathbf{y}^{11}) * P_{12}(\mathbf{y}^{12}) * \dots * P_{LM}(\mathbf{y}^{LM}).$$

The generating function

$$G(\mathbf{v}) = \int e^{\mathbf{v}\mathbf{Y}} P(\mathbf{Y}) d\mathbf{Y}$$

of the distribution  $P(\mathbf{Y})$  is thus equal to the product of the generating functions of the individual distributions,

$$G(\mathbf{v}) = G_0(\mathbf{v}) \prod_{v\mu} G_{\lambda\mu}(\mathbf{v}),$$

where  $G_0(v)$  is the distribution of  $\vartheta_0 \mathbf{X}$ .

It is convenient to introduce logarithmic generating functions

$$H(\mathbf{v}) = \ln G(\mathbf{v}), \quad H_{v\mu}(\mathbf{v}) = \ln G_{v\mu}(\mathbf{v}).$$

One thus obtains

$$H(\mathbf{v}) = H_0(\mathbf{v}) + \sum_{\lambda\mu} H_{\lambda\mu}(\mathbf{v}). \quad (12)$$

From (12) we find, neglecting again terms of higher order,

$$H_{\lambda\mu}(\mathbf{v}) = P_{\lambda\mu}(e^{\mathbf{v}\mathbf{y}^{(\lambda\mu)}} - 1). \quad (13)$$

Replacing the summation into  $\lambda\mu$  by integration into  $\xi$  and  $\vartheta$  we thus find from (12) and (13) with help of (8) and (9)

$$H(\mathbf{v}) = H_0(\mathbf{v}) + \int a(\xi) \varphi(\xi; \vartheta) (e^{\mathbf{v}\Delta(x-\xi)\vartheta} - 1) d\vartheta d\xi, \quad (14)$$

where we have introduced the notation

$$\Delta(\mathbf{x} - \xi) = \Delta(x_1 - \xi), \Delta(x_2 - \xi), \dots, \Delta(x_{N+1} - \xi).$$



With help of (4) we may also write in place of (14)

$$H(\mathbf{v}) = H_0(\mathbf{v}) = \int a(\xi) [L_\varphi(\xi; \mathbf{v} \Delta(\mathbf{x} - \xi)) - 1] d\xi. \quad (15)$$

§ 7. The equation (15) gives thus in an explicit form the generating function of the simultaneous distribution of the  $Y$ -coordinates of  $N + 1$  points of a track. It is inconvenient that (15) contains the term  $H_0(v)$  connected with the distribution  $\varphi_0(\vartheta_0)$  of the angle of incident tracks. If we were to put

$$\varphi_0(\vartheta_0) = \delta(\vartheta_0), \quad (16)$$

i.e. if we were to assume that the particle enters parallel to the  $X$ -axis, then from (16) it could be concluded that  $H_0(\mathbf{v}) = 0$ . However, an assumption of the form (16) cannot be justified as particles are bound to enter with various initial directions. Furthermore, it is not possible to require that the  $X$ -axis be turned parallel to the initial direction as there is no possibility to measure  $\vartheta_0$  directly.

§ 8. A way out of the difficulty is found when we turn the  $X$ -axis so as to make the last point of the track fall onto it.

We suppose the latter adjustment to be small; neglecting second-order terms the projection of the angle by which we have to turn the  $X$ -axis is given by

$$\bar{\vartheta} = Y_{N+1}/X_{N+1}.$$

Neglecting terms of higher order in  $\bar{\vartheta}$  we find that the  $X$ -coordinates of the points of the track will be affected by the adjustment to a negligible degree only, while the  $Y$ -coordinates of our points relative to the re-orientated  $X$ -axis will be given by

$$\bar{Y}_\nu = Y_\nu - X_\nu Y_{N+1}/X_{N+1}.$$

Introducing a vector  $\bar{\mathbf{Y}}$  with components  $\bar{Y}_\nu$ , we may also write

$$\bar{\mathbf{Y}} = \mathbf{Y} - \mathbf{X} Y_{N+1}/X_{N+1}. \quad (17)$$

The distribution  $\bar{P}(\bar{\mathbf{Y}})$  of the vector defined by (17) can be obtained by a method analogous to that described above for obtaining the distribution  $P(\mathbf{Y})$  of  $\mathbf{Y}$ .

Indeed, in place of (9) we may write

$$\bar{Y}_\nu^{(\lambda, \mu)} = \Delta_1(X_\nu - \xi_\mu) \vartheta_\lambda,$$

where

$$\Delta_1(X_\nu - \xi_\mu) = \Delta(X_\nu - \xi_\mu) - X_\nu \left( 1 - \frac{\xi_\mu}{X_{N+1}} \right). \quad (18)$$

Thus explicitly written

$$\Delta_1(X_v - \xi) = \begin{cases} -\xi \left(1 - \frac{X_v}{X_{N+1}}\right) & \text{if } \xi < X_v, \\ -X_v \left(1 - \frac{\xi}{X_{N+1}}\right) & \text{if } \xi > X_v. \end{cases}$$

The logarithmic generating function

$$\bar{H}(\mathbf{v}) = \ln \int e^{\mathbf{v}\bar{\mathbf{Y}}} \bar{P}(\bar{\mathbf{Y}}) d\bar{\mathbf{Y}}$$

thus becomes

$$\bar{H}(\mathbf{v}) = \int a(E) (L_\varphi(E; \mathbf{v}\Delta_1(\mathbf{X} - \xi)) - 1) d\xi, \quad (19)$$

where

$$\Delta_1(\mathbf{X} - \xi) = \Delta_1(X_1 - \xi), \Delta_1(X_2 - \xi), \dots, \Delta_1(X_N - \xi).$$

The  $N + 1$ st component of  $\Delta_1(\mathbf{X} - \xi)$  can be omitted as according to (18) this component vanishes identically inside the interval of integration. The generating function  $\bar{H}(\mathbf{v})$  and therefore the corresponding distribution  $\bar{P}(\bar{\mathbf{Y}})$  contains no contribution from the distribution of  $\vartheta_0$ .

§ 9. With help of the generating function (19) moments of the components of  $\bar{\mathbf{Y}}$  can be obtained. In particular, remembering (2) we find

$$\langle \bar{Y}_v \rangle = 0, \quad v = 1, 2, \dots, N,$$

further using (3),

$$\langle \delta \bar{Y}_v \delta \bar{Y}_{v'} \rangle = \langle \bar{Y}_v \bar{Y}_{v'} \rangle = \int \Delta_1(X_v - \xi) \Delta_1(X_{v'} - \xi) a(\xi) \kappa^2(\xi) d\xi.$$

Simple expressions are obtained for the case where

$$a(\xi) = a, \quad \kappa^2(\xi) = \kappa^2;$$

in this latter case we find with help of (18)

$$\langle \bar{Y}_v \bar{Y}_{v'} \rangle = a(X - X_v) [X^2 - X_{v'}^2 - (X - X_{v'})^2] X_v / X_{v'}, \quad (20)$$

$$X_v \geq X_{v'}, \quad X = X_{N+1}.$$

An interesting expression is obtained for the correlation coefficient between two values  $\bar{Y}_v$ ; with help of (20) one finds

$$r_{vv'} = \langle \bar{Y}_v \bar{Y}_{v'} \rangle / \langle \bar{Y}_v^2 \rangle^{1/2} \langle \bar{Y}_{v'}^2 \rangle^{1/2} = 1 - \frac{(X_v - X_{v'})^2}{2X_{v'}(X - X_{v'})}$$

provided  $X_v \leq X_{v'}$ ,  $X = X_{N+1}$ .



§ 10. For practical purposes it is convenient to use the sagittas instead of the  $Y$ -coordinates, i.e.

$$D_v = Y_{v-1} - 2Y_v + Y_{v+1}, \quad v = 1, 2, \dots, N.$$

So as to obtain the distribution of the sagittas, we note that we may write in place of (7)

$$D_v = \sum_{\lambda\mu} d_v^{(\lambda\mu)}, \quad v = 1, 2, \dots, N,$$

where

$$d_v^{(\lambda\mu)} = y_{v-1}^{(\lambda\mu)} - 2y_v^{(\lambda\mu)} + y_{v+1}^{(\lambda\mu)}, \quad v = 1, 2, \dots, N.$$

$d_v^{(\lambda\mu)}$  is the contribution from the interval  $\lambda\mu$  to the sagitta  $D_v$ . This contribution is zero if no collision occurs in that interval; if there is a collision in the interval  $\lambda\mu$ , then the contribution is given by

$$D_v^{(\lambda\mu)} = \Delta_2(X_v - \xi_\mu) \vartheta_\lambda,$$

where

$$\Delta_2(X) = \Delta(X - s) - 2\Delta(X) + \Delta(X + s). \quad (21)$$

Explicitly we find thus

$$\Delta_2(X) = \begin{cases} 0 & \text{if } |X| = > s, \\ s - X & \text{if } -s < X < 0, \\ X - s & \text{if } 0 < X < s. \end{cases}$$

The logarithmic generating function of the distribution  $P_2(\mathbf{D})$  of the sagittas

$$H_2(\mathbf{v}) = \ln \int e^{\mathbf{v}\mathbf{D}} P_2(\mathbf{D}) d\mathbf{D}$$

is found to be

$$H_2(\mathbf{v}) = \int a(\xi) (L_\varphi(\xi; \mathbf{v} \Delta_2(\mathbf{X} - \xi)) - 1) d\xi, \quad (22)$$

where  $\Delta_2(\mathbf{X} - \xi)$  is the vector with components

$$\Delta_2(X_v - \xi), \quad v = 1, 2, \dots, N.$$

From (22) follows

$$\langle \mathbf{D}_v \rangle = 0,$$

further

$$\langle \mathbf{D}_v \mathbf{D}_{v'} \rangle = \int \Delta_2(X_v - \xi) \Delta_2(X_{v'} - \xi) a(\xi) \kappa^2(\xi) d\xi \quad (23)$$

for such values  $X_v$  and  $X_{v'}$ , where the functions  $\Delta_2(X_v - \xi)$  and  $\Delta_2(X_{v'} - \xi)$  do not overlap and the integral vanishes. We find thus

$$\langle D_v D_{v'} \rangle = 0 \quad \text{if} \quad |v - v'| > 1.$$

Furthermore, for  $a(X) = a$ ,  $\kappa^2(X) = \kappa^2$ , we find from (23) the well-known expression:

$$\left. \begin{aligned} \langle D_v^2 \rangle &= 2a\kappa^2 s^3/3, \\ \langle D_v D_{v+1} \rangle &= \frac{1}{4} \langle D_v^2 \rangle. \end{aligned} \right\} \quad (24)$$

§ 11. Slightly generalizing the procedure, we can also determine correlation coefficients between two sagittas the centers of which are shifted by an amount  $hs$  which quantity is not necessarily an integral multiple of the step  $s$ . Denoting such sagittas by  $D_v$  and  $D_{v+h}$ , we find as the result of a simple calculation

$$\langle D_v D_{v+h} \rangle = \langle D_v^2 \rangle g(|h|),$$

where

$$g(h) = \int \Delta_2(\xi) \Delta_2(\xi + sh) d\xi \Big/ \frac{2}{3} s^3. \quad (25)$$

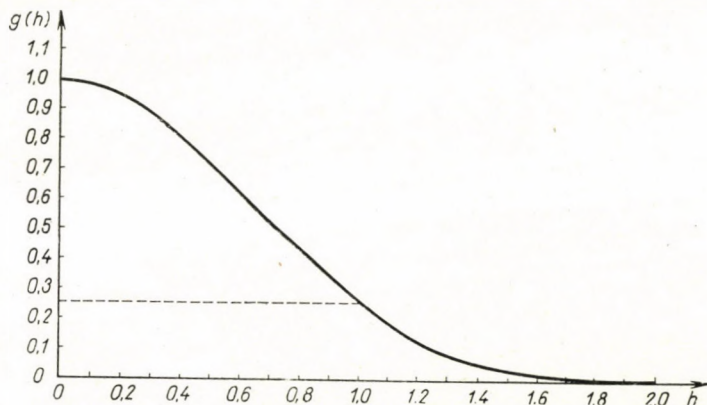


Fig. 1. Correlation coefficient between sagittas as function of their relative distance  $d/s = h$

Introducing (21) into (25) we find

$$g(h) = \begin{cases} (4 - 6h^2 + 3h^3)/4 & \text{if } 0 \leq h \leq 1, \\ (2 - h)^3/4 & \text{if } 1 \leq h \leq 2, \\ 0 & \text{if } h > 2. \end{cases}$$

We have plotted  $g(h)$  in the Figure.



### The Gaussian approximation of the distributions

§ 12. Expanding (22) into powers of  $\mathbf{v}$  we find

$$H_2(\mathbf{v}) = \frac{1}{2} \sum_{\nu, \mu} A_{\nu\mu} v_\nu v_\mu + \text{terms of fourth and higher order,}$$

where the coefficients,

$$A_{\nu\mu} = \langle \mathbf{D}_\nu \mathbf{D}_\mu \rangle,$$

can be obtained from (23). In many cases the higher order terms can be neglected. In such an approximation the distribution belonging to the generating function (26) has the form of a Gaussian distribution, namely

$$P_2(\mathbf{D}) = (2\pi)^{-\frac{1}{2}N} (\det \mathbf{A})^{1/2} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \sum_{\nu, \mu} A_{\nu\mu}^+ D_\nu D_\mu \right\}, \quad (27)$$

where we denote by  $\mathbf{A}$  the matrix with elements  $A_{\nu\mu}$  and by  $A_{\nu\mu}^+$  the elements of the reciprocal matrix  $\mathbf{A}^{-1}$ .

The explicit expression for the distribution (27) can be obtained with help of the reciprocal elements of the matrix  $\mathbf{A}$ . Supposing the elements to be given in the approximation of equ. (24) the matrix  $\mathbf{A}$  can be inverted and the explicit form of the distribution thus obtained. We have obtained the explicit form of (27) by a much more inconvenient procedure in a previous paper [1]

### Back ground noise

§ 13. The measured values  $Y_\nu$  of the points of a track can be regarded as consisting of two components

$$Y_\nu = Y'_\nu + Y''_\nu,$$

where  $Y'_\nu$  is the true point on the track, while  $Y''_\nu$  is the measuring error. Similarly, the measured sagittas can be taken to consist of two parts and we may write

$$D_\nu = D'_\nu + D''_\nu,$$

where we suppose

$$\left. \begin{aligned} D'_\nu &= Y'_\nu - 2Y''_\nu + Y''_{\nu\nu} \\ D''_\nu &= Y''_\nu - 2Y''_{\nu\nu} + Y''_{\nu\nu\nu} \end{aligned} \right\} \quad (28)$$

As the vectors  $\mathbf{D}'$  and  $\mathbf{D}''$  are independent of each other, the distribution of  $\mathbf{D}$  can be taken as the folding of the distributions of its components, i.e.

$$P_2(\mathbf{D}) = P_2'(\mathbf{D}) * P_2''(\mathbf{D}),$$

where we have adopted a new notation:

For convenience we denote by  $P_2'(\mathbf{D})$  the distribution of the true values of the sagittas; this distribution was denoted by  $P_2(\mathbf{D})$  further above. We shall denote in the following by  $P_2(\mathbf{D})$  the distribution of the measured sagittas and not that of their true values.

Introducing the logarithmic generating functions of the distributions above, we may also write

$$H_2(\mathbf{v}) = H_2'(\mathbf{v}) + H_2''(\mathbf{v}), \quad (29)$$

where  $H_2'(v)$  is given explicitly in (22) (there we have used the notation  $H_2(v)$  instead of  $H_2'(v)$ ).

So as to obtain an explicit expression for  $H_2''(v)$ , the logarithmic generating function of the distribution of the measuring errors, the simplest assumption seems to be

$$P''(\mathbf{Y}'') = P''(Y_0'') P''(Y_1'') \dots P''(Y_{N+1}''), \quad (30)$$

where

$$P''(Y) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\kappa_2^2}} \exp \left\{ -Y^2/2\kappa_2^2 \right\}, \quad (31)$$

is a Gaussian distribution. From (30) and (31) it follows that

$$\left. \begin{aligned} \langle Y_\nu \rangle &= 0, & \langle Y_\nu'' Y_\mu'' \rangle &= 0 & \text{if } \nu \neq \mu, \\ \langle Y_\nu''^2 \rangle &= \kappa_2^2 & \nu, \mu &= 1, 2, \dots, N. \end{aligned} \right\} \quad (32)$$

We note that the components  $Y_0''$  and  $Y_{N+1}''$  of  $\mathbf{Y}''$  have to be taken into consideration. Indeed, if we try, e.g. as described in § 8, to lay the  $X$ -axis through the first and last points of the track, then  $Y_0''$  and  $Y_{N+1}''$  represent the errors of this adjustment.

The errors of the sagittas, i.e. the values of  $D_\nu''$  are linear combinations of the values of  $Y_\nu''$ ; thus the distribution of the components of  $\mathbf{D}''$  must be of the Gaussian form. The moments of  $\mathbf{D}''$  can be obtained from (32) and (28):

$$\langle D_\nu'' D_\mu'' \rangle = B_{\nu\mu}, \quad \nu\mu = 1, 2, \dots, N,$$

where

$$B_{\nu\mu} = \begin{cases} 6\kappa_2^2 & \text{if } \nu = \mu, \\ -4\kappa_2^2 & \text{if } |\nu - \mu| = 1, \\ \kappa_2^2 & \text{if } |\nu - \mu| = 2, \\ 0 & \text{if } |\nu - \mu| > 2. \end{cases}$$



The generating function can thus be written

$$H_2''(\mathbf{v}) = + \frac{1}{2} \sum_{\nu\mu} B_{\nu\mu} v_\nu v_\mu. \quad (33)$$

Introducing into equ. (29) the expression for  $H_2''(\mathbf{v})$  from equ. (33) and for  $H_2'(\mathbf{v})$  the expression for  $H_2(\mathbf{v})$  from equ. (22) we find the generating function of the distribution of the measured values. In particular if we use the approximation (26) we find

$$H_2(\mathbf{v}) = \frac{1}{2} \sum M_{\nu\mu} v_\nu v_\mu,$$

where

$$M_{\nu\mu} = A_{\nu\mu} + B_{\nu\mu}.$$

The corresponding distribution is a Gaussian, we have thus

$$P_2(\mathbf{D}) = (2\pi)^{-\frac{1}{2}N} (\det \mathbf{M})^{1/2} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \sum M_{\nu\mu}^+ D_\nu D_\mu \right\},$$

where the  $M_{\nu\mu}^+$  are the elements of the matrix  $\mathbf{M}^{-1}$ , reciprocal to the matrix  $\mathbf{M}$  with elements  $M_{\nu\mu}$ . So as to get an explicit expression for  $P_2(\mathbf{D})$  it is necessary to invert the matrix  $\mathbf{M}$ . Although the (somewhat complicated) explicit expression for the elements  $M_{\nu\mu}^+$  can be obtained, we shall not give these expressions, as there seems little need for them, since, as we shall show in a subsequent paper, the determination of the scattering constant and the noise level can be carried out in terms of the elements of  $\mathbf{M}$  only.

#### REFERENCES

1. L. JÁNOSSY, Acta Phys. Hung., 7. 385, 1957.
2. G. MOLIÈRE, Z. Naturforschg., 10a. 177, 1955.
3. G. YEKUTIELI, CERN Report, B. S. 7.

#### ОБ ОДНОВРЕМЕННОМ РАСПРЕДЕЛЕНИИ ОТКЛОНЕНИЙ СЛЕДОВ ЧАСТИЦ В ЭМУЛЬСИИ ПРИ НАЛИЧИИ ФОНА

Л. ЯНОШИ

Резюме

В статье даем простой метод для нахождения функции одновременного распределения отклонений некоторого следа в фотографической эмульсии в случае одного лишь кулоновского рассеяния и также при наличии фона.

Полученное таким образом выражение будет использовано в следующей статье, в которой оцениваются параметры рассеяния методом наибольшей вероятности.

# ÜBER DEN MOTTSCHEN POLARISATIONSEFFEKT BEI DER STREUUNG VON ELEKTRONEN AN THOMAS—FERMISCHEN UND HARTREESCHEN ATOMEN

Von

T. TIETZ

INSTITUT FÜR THEORETISCHE PHYSIK, UNIVERSITÄT LÓDŹ, LÓDŹ, POLEN

(Vorgelegt von A. Kónya. — Eingegangen 14. V. 1960)

In dieser Arbeit soll die Frage nach dem Einfluss der Elektronenhülle des streuenden Atoms auf den Asymmetrieeffekt untersucht werden. Da es sich bei den experimentellen Untersuchungen stets um Streuung unter  $90^\circ$  handelt, wird hier auch dieser Fall behandelt. Der Potentialverlauf im Atominnern wird hier nach HARTREE oder THOMAS—FERMI behandelt. Die Durchrechnung für diesen Potentialverlauf bereitet keine prinzipiellen Schwierigkeiten. Die Verwendung geeigneter Approximationen für den betrachteten Potentialverlauf im Atominnern besitzt den Vorteil, dass alle dort vorkommenden Integrale sich in geschlossener Form ausführen lassen, und dass man durch den entsprechenden Grenzübergang im Resultat zum Grenzfall des reinen Coulombfeldes übergehen kann. Als besonders geeignet zur Behandlung des Asymmetrieeffektes erweist sich die BORN—DIRACsche Stossmethode in der Darstellung von SAUTER. Ihr Vorteil gegenüber der DALITZschen modernen Behandlung der BORN—DIRACschen Stossmethode besteht in ihrer Einfachheit und Übersichtlichkeit und reicht zur korrekten Behandlung des Asymmetrieeffektes vollkommen aus.

Wie bekannt, kommt es beim MOTTSCHEN [1] Polarisations-effekt wesentlich auf die Grösse  $\delta_c$  der Asymmetrie in der Intensitätsverteilung an, für welche MOTT im Falle der zweimaligen Streuung von Elektronen an freien Kernen bei Vernachlässigung der Glieder höherer Ordnung in  $\alpha^2 Z^2$  ( $\alpha$  = Feinstrukturkonstante,  $Z$  = Ordnungszahl des streuenden Kerns) folgende Formel bekommen hat:

$$\delta_c = 4\alpha^2 Z^2 \beta^2 (1 - \beta)^2 \frac{\sin^2 \frac{\vartheta_1}{2} \operatorname{tg} \frac{\vartheta_1}{2} \ln \left( \sin \frac{\vartheta_1}{2} \right)}{1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta_1}{2}} \quad (1)$$

$$\cdot \frac{\sin^2 \frac{\vartheta_2}{2} \operatorname{tg} \frac{\vartheta_2}{2} \ln \left( \sin \frac{\vartheta_2}{2} \right)}{1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta_2}{2}} \quad \text{mit} \quad \beta = \frac{v}{c} .$$

In dieser Formel sind  $\vartheta_1$  und  $\vartheta_2$  die beiden Streuwinkel,  $c$  ist die Lichtgeschwindigkeit und  $v$  ist die Elektronengeschwindigkeit. Wie bekannt, ist der MOTT-



sche Polarisierungseffekt dadurch bedingt, dass das Elektron ausser seiner Ladung noch ein magnetisches Moment trägt. Es handelt sich bei diesem Effekt um die Streuung von schnellen Elektronen an freien Kernen (Coulombfeld). Wegen des magnetischen Momentes wirkt auf die Elektronen beim Durchgang durch ein Coulombfeld oder allgemeiner durch ein Hartreefeld ausser der elektrostatischen Kraft noch eine Zusatzkraft, welche wesentlich von der Orientierung der Spins relativ zur Bahn abhängt und eine Korrektur der Verteilungsformel für die Streuintensität zur Folge hat. MOTT hat  $\delta_c$  unter Verwendung der strengen Lösungen der Diracgleichung im Falle des reinen Coulombfeldes abgeleitet. SAUTER [2] hat das MOTTSche Resultat nach einer anderen Methode noch einmal abgeleitet. Als besonders geeignet zur Behandlung des Asymmetrieeffektes erweist sich, wie SAUTER gezeigt hat, die BORN—DIRACsche Stossmethode. In dieser Arbeit werden wir die SAUTERSche Darstellung der BORN—DIRACschen Stossmethode verwenden und den Einfluss der Elektronenhülle des streuenden Atoms auf den Asymmetrieeffekt betrachten. In neuester Zeit hat DALITZ [3] die BORN—DIRACsche Methode streng und sehr modern auch für höhere Näherungen betrachtet. Die DALITZsche Methode ist für viele physikalische Probleme sehr wertvoll, für den Fall der Behandlung des Asymmetrieeffektes erweist sich jedoch die SAUTERSche Darstellung als völlig ausreichend und streng. In der SAUTERSchen Methode kommt es nur auf die Berechnung einiger Matrixelemente an. Für das Potential  $V(r)$  ist in der statistischen Theorie des Atoms das Atompotential zu setzen. Für  $V(r)$  werden folgende Ausdrücke benutzt:

$$V(r) = -\frac{Ze^2}{r} (Z_p/Z) \quad \text{oder} \quad V(r) = -\frac{Ze^2}{r} \Phi(x) = -\frac{Ze^2}{r} \Phi\left(\frac{r}{\mu}\right). \quad (2)$$

In dieser Formel ist  $(Z_p/Z)$  die reduzierte effektive Kernladung der neutralen Atome und  $\Phi(x)$  ist die Thomas—Fermische Funktion des freien neutralen Atoms. In der letzten Gleichung ist  $Z$  die Ordnungszahl des Atoms und die wohlbekannte Konstante  $\mu$  der statistischen Theorie des Atoms ergibt sich aus der Formel [4]

$$x = (r/\mu) = (r/0,88534 a_0 Z^{-1/3}). \quad (3)$$

In dieser Formel ist  $a_0$  der kleinste Bohrsche Wasserstoffradius und  $x$  ist die dimensionslose Variable. Bezeichnet man mit  $\vec{p}_0$  den Impuls der primären Elektronen, mit  $\vec{p}$  den der gestreuten, wobei wegen des Energiesatzes  $\vec{p}^2 = \vec{p}_0^2 = p^2$  gilt, und ferner mit  $\vartheta$  den Winkel zwischen den beiden Vektoren



$\vec{p}_0$  und  $\vec{p}$ , so ergibt sich für die Streuintensität in erster Näherung folgende Formel:

$$J_1 = \frac{J_0}{R^2} (2\pi mh)^2 \frac{1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta}{2}}{1 - \beta^2} |V(\vec{p}, \vec{p}_0)|^2. \quad (4)$$

In dieser Formel ist  $J_0$  die Intensität der Primärstrahlung (die Anzahl der Elektronen, die in der Sekunde durch den Quadratcentimeter hindurchtreten),  $R$  ist der Abstand vom Streuzentrum,  $m$  ist die Elektronenmasse und  $h$  ist die Plancksche Konstante. Das Störungsintegral  $V(\vec{p}, \vec{p}_0)$  lässt sich schreiben

$$V(\vec{p}, \vec{p}_0) = - \frac{Ze^2}{\pi h p^2} U(\vec{e}, \vec{e}_0) = - \frac{Ze^2}{\pi h p^2} \int_0^\infty f\left(\frac{yh}{p}\right) \frac{\sin\left(2y \sin \frac{\vartheta}{2}\right)}{2 \sin \frac{\vartheta}{2}} dy, \quad (5)$$

wo  $f\left(\frac{yh}{p}\right) = f(r) = (Z_p/Z)$  oder  $f(r) = \Phi(r/\mu)$  bedeutet. Weiter ist  $\vec{e}_0$  der Einheitsvektor vor der Streuung und  $\vec{e}$  der Einheitsvektor nach der Streuung. Für die Richtung des magnetischen Momentes nach der Streuung ergibt sich in erster Näherung die Formel:

$$\vec{m}_1 = \frac{1}{R^2} (2\pi mh)^2 \frac{|V(\vec{p}, \vec{p}_0)|^2}{1 - \beta^2} \left[ \vec{m}_0 \left(1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta}{2}\right) + (\vec{m}_0 \times \vec{n}) \frac{\beta^2 \sin^2 \vartheta}{2} + \right. \\ \left. + (\vec{m}_0 \times \vec{n} \cos \vartheta + \vec{m}_0 \times \vec{n} \times \vec{n} \sin \vartheta) \frac{(1 - \sqrt{1 - \beta^2})}{2} \sin \vartheta \right]. \quad (6)$$

In dieser Formel bedeutet  $\vec{m}_0$  als Vektor den wellenmechanischen Erwartungswert für das magnetische Moment eines Elektrons vor der Streuung (bezogen auf sein Ruhesystem) und  $\vec{n}$  ist der Einheitsvektor zur Streuebene; es ist  $\vec{p} \times \vec{p}_0 = \vec{n} p^2 \sin \vartheta$ . Die Formel (6) für  $\vec{m}_1$  zeigt, dass  $\vec{m}_1$  in  $\vec{m}_0$  linear homogen ist. Die Mittelung über alle Spinrichtungen von  $m_0$  des unpolarisierten Primärstrahls zeigt, dass  $\vec{m}_1$  verschwindet. Die Formel für  $J_1$  zeigt, dass  $J_1$  symmetrisch um die Richtung des Vektors  $\vec{p}_0$  ist.  $J_1$  hängt nicht von der Spinrichtung der Primärstrahlen ab. Die zweite Näherung für die Intensitätsverteilung  $J_2$  lautet:

$$J_2 = \frac{1}{R^2} \left(\frac{2e^2 Z}{mv^2}\right)^2 \frac{e^2 Z}{2hc} (\sqrt{1 - \beta^2})^3 \beta \vec{m}_0 \cdot (\vec{e} \times \vec{e}_0) U(\vec{e}_0, \vec{e}) W(\vec{e}, \vec{e}_0) \quad (7)$$



und für die Richtung des magnetischen Momentes  $\vec{m}_2$  nach der Streuung in dieser Näherung hat man

$$\vec{m}_2 = \frac{J_0}{R^2} \left( \frac{2e^2 Z}{mv^2} \right)^2 \frac{e^2 Z}{2hc} (\sqrt{1-\beta^2})^3 \beta (\vec{e} \times \vec{e}_0) U(\vec{e}_0, \vec{e}) \mathcal{W}(\vec{e}, \vec{e}_0). \quad (8)$$

$U(\vec{e}_0, \vec{e})$  in den Formeln (7) und (8) ist durch die Gleichung (5) gegeben und  $\mathcal{W}(\vec{e}, \vec{e}_0)$  ist durch folgenden Ausdruck festgelegt:

$$\mathcal{W}(\vec{e}, \vec{e}_0) = \int \left[ 1 - \frac{\vec{e} \cdot (\vec{e}_0 + \vec{e})}{1 + (\vec{e} \cdot \vec{e})} \right] U(\vec{e}, \vec{e}') U(\vec{e}', \vec{e}_0) d\Omega', \quad (9)$$

wobei  $d\Omega'$  ein Raumwinkelelement im Impulsraume bedeutet. Die hier auftretende Integration ist über die verschiedenen Zwischenzustände auszuführen,  $\vec{e}'$  ist der Einheitsvektor des Zwischenzustandes. In Tabelle I haben wir verschiedene Approximationen für die reduzierte effektive Kernladung ( $Z_p/Z$ ) und die Thomas—Fermische Funktion des freien neutralen Atoms  $\Phi(x)$  zusammengestellt.

Die Integrale (5) und (9) lassen sich für die Approximationen für ( $Z_p/Z$ ) oder  $\Phi(x)$  aus Tabelle I leicht ausrechnen. Mit Hilfe von Tabelle I lässt sich das Atompotential, Gleichung (2), wie folgt ganz allgemein schreiben:

$$\begin{aligned} V(r) &= -\frac{Ze^2}{r} (c_1 e^{-b_1 x} + c_2 e^{-b_2 x} + c_3 e^{-b_3 x}) = \\ &= -\frac{Ze^2}{r} (c_1 e^{-b_1 r/\mu} + c_2 e^{-b_2 r/\mu} + c_3 e^{-b_3 r/\mu}). \end{aligned} \quad (10)$$

Die Konstanten  $c_1, c_2, c_3$  und  $b_1, b_2, b_3$ , welche in der Gleichung (10) vorkommen, findet man in der Tabelle I. In Gleichung (10) ist  $\mu$  die wohlbekannte Konstante der statistischen Theorie des Atoms und ergibt sich aus der Formel (3). Die letzte Formel für  $V(r)$  erlaubt uns  $U(\vec{e}, \vec{e}_0)$  zu berechnen. Für  $U(\vec{e}, \vec{e}_0)$  ergibt sich, wie eine leichte Rechnung zeigt, folgender Ausdruck:

$$U(\vec{e}_0, \vec{e}) = \frac{c_1}{2(\gamma_1 - \cos \vartheta)} + \frac{c_2}{2(\gamma_2 - \cos \vartheta)} + \frac{c_3}{2(\gamma_3 - \cos \vartheta)}, \quad (11)$$

wo die Grössen  $\gamma_i$  durch folgende Formel gegeben sind:

$$\gamma_i = 1 + \frac{1}{2} \left( \frac{hb_i}{p\mu} \right)^2 \quad \text{mit } i = 1, 2, 3. \quad (12)$$

**Tabelle I**  
Analytische Näherungen für  $(Z_p/Z)$  und  $\Phi(x)$

Atom	$(Z_p/Z)$ eingliedrig	$(Z_p/Z)$ mehrgliedrig
He	$e^{-1,60x}$ (BYATT [9])	$1,25e^{-1,75x} - 0,25e^{-3,845x}$ (BYATT [9])
Be		$e^{-0,574x} - 0,48e^{-1,081x} + 0,48e^{-3,06x}$ (BYATT [9])
C		$1,25e^{-0,828x} - 0,44e^{-1,41x} + 0,19e^{-4,29x}$ (BYATT [9])
N	$e^{-0,95x}$ (BYATT [9])	$1,20e^{-0,904x} - 0,32e^{-1,43x} + 0,12e^{-9,65x}$ (BYATT [9])
O	$e^{-0,919x}$ (BYATT [9])	$1,25e^{-0,991x} - 0,35e^{-1,63x} + 0,10e^{-18,3x}$ (BYATT [9])
F	$e^{-0,907x}$ (BYATT [9])	
Ne	$e^{-0,978x}$ (BYATT [9])	
A		$[0,84e^{-0,566x} - 0,24e^{-1,056x} + 0,40e^{-3,26x}]^*$ (HOLTSMARK [5]) $0,659e^{-0,574x} + 0,341e^{-2,77x}$ (RUARK [6])
K		$0,124e^{-0,514x} + 0,68e^{-0,765x} + 0,196e^{-2,80x}$ (BYATT [9])
Ca		$0,20e^{-0,195x} + 0,56e^{-0,770x} + 0,24e^{-3,08x}$ (BYATT [9])
Cr	$e^{-0,731x}$ (BYATT [9])	$e^{-0,731x} - 0,20e^{-1,26x} + 0,20e^{-3,70x}$ (BYATT [9])
Fe		$0,25e^{-0,335x} + 0,56e^{-0,828x} + 0,19e^{-3,76x}$ (BYATT [9])
Zn		$0,22e^{-0,319x} + 0,78e^{-1,081x}$ (BYATT [9])
Ge		$0,22e^{-0,263x} + 0,78e^{-1,165x}$ (BYATT [9])
As		$0,295e^{-0,387x} + 0,705e^{-1,295x}$ (BYATT [9])
Br		$0,36e^{-0,366x} + 0,64e^{-1,483x}$ (BYATT [9])
Kr		$[0,335e^{-0,29x} + 0,60e^{-1,33x} + 0,065e^{-7x}]^*$ (HOLTSMARK [5]) $0,415e^{-0,378x} + 0,51e^{-1,48x} + 0,075e^{-7x}$ (BYATT [9])
W		$0,19e^{-0,216x} + 0,72e^{-0,97x} + 0,09e^{-15x}$ (BYATT [9])
Hg		$0,19e^{-0,257x} + 0,56e^{-0,779x} + 0,25e^{-3,16x}$ (BYATT [9])
$\Phi(x)$		$0,255e^{-0,246x} + 0,581e^{-0,947x} + 0,164e^{-4,356x}$ (ROZENTAL [8])
$\Phi(x)$		$0,35e^{-0,3x} + 0,55e^{-1,2x} + 0,1e^{-6x}$ (MOLIÈRE [7])

\* Dieser Ausdruck enthält die Polarisationskorrektur, siehe [5].



Geht man mit (11) in die Formel (9) für  $W(\vec{e}, \vec{e}_0)$  ein, so ergibt sich

$$W(\vec{e}, \vec{e}_0) = \frac{1}{4} \int \left[ 1 - \frac{\vec{e}' \cdot (\vec{e}_0 + \vec{e})}{1 + \vec{e}_0 \cdot \vec{e}} \right] \left[ \frac{c_1}{\gamma_1 - \vec{e}_0 \cdot \vec{e}'} + \frac{c_2}{\gamma_2 - \vec{e}_0 \cdot \vec{e}'} + \frac{c_3}{\gamma_3 - \vec{e}_0 \cdot \vec{e}'} \right] + \left[ \frac{c_1}{\gamma_1 - \vec{e}' \cdot \vec{e}} + \frac{c_2}{\gamma_2 - \vec{e}' \cdot \vec{e}} + \frac{c_3}{\gamma_3 - \vec{e}' \cdot \vec{e}} \right] \cdot d\Omega'. \quad (13)$$

Im Polarkoordinatensystem mit der Polarachse in der Richtung  $\vec{e}_0 + \vec{e}$  lässt sich die Integration über die verschiedenen Richtungen von  $\vec{e}'$  ausführen, und dies ergibt wegen  $\vec{e}_0 \cdot \vec{e} = \cos \vartheta$  folgende Formel für  $W(\vec{e}, \vec{e}_0)$ :

$$W(\vec{e}_0, \vec{e}) = \frac{\pi}{2 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}} \sum_{i=1}^3 c_i^2 \left\{ \ln \frac{\gamma_i + 1}{\gamma_i - 1} - \frac{\gamma_i + \cos^2 \frac{\vartheta}{2}}{\sin \frac{\vartheta}{2} \sqrt{\gamma_i^2 - \cos^2 \frac{\vartheta}{2}}} \ln \frac{\sqrt{\gamma_i^2 - \cos^2 \frac{\vartheta}{2}} + \sin \frac{\vartheta}{2}}{\sqrt{\gamma_i^2 - \cos^2 \frac{\vartheta}{2}} - \sin \frac{\vartheta}{2}} \right\} + \frac{\pi c_1 c_2}{2 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}} \left[ \ln \frac{\gamma_1 + 1}{\gamma_1 - 1} + \ln \frac{\gamma_2 + 1}{\gamma_2 - 1} \right] + \frac{\pi c_1 c_3}{2 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}} \left[ \ln \frac{\gamma_1 + 1}{\gamma_1 - 1} - \ln \frac{\gamma_3 + 1}{\gamma_3 - 1} \right] + \frac{\pi c_2 c_3}{2 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}} \left[ \ln \frac{\gamma_2 + 1}{\gamma_2 - 1} + \ln \frac{\gamma_3 + 1}{\gamma_3 - 1} \right] + \frac{\pi c_1 c_2 (\gamma_1 + \gamma_2 - 2 \cos^2 \frac{\vartheta}{2})}{2 \cos^2 \frac{\vartheta}{2} \sqrt{(\gamma_1 + \gamma_2)^2 - (\gamma_1 \gamma_2 + \sin^2 \frac{\vartheta}{2})}} \cdot 4 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}. \quad (14)$$

$$\sum_{i=1}^2 \ln \left[ \frac{\left( \gamma_i - \cos \frac{\vartheta}{2} \right) \sqrt{(\gamma_1 + \gamma_2)^2 - \left( \sin^2 \frac{\vartheta}{2} + \gamma_1 \gamma_2 \right) 4 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}}}{2 \cos \frac{\vartheta}{2} - (\gamma_1 + \gamma_2)} + \frac{\left( \gamma_i^2 - \gamma_1 \gamma_2 - 2 \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right) \cos \frac{\vartheta}{2} + \left( \gamma_1 + \gamma_2 - 2 \gamma_i \cos^2 \frac{\vartheta}{2} \right)}{2 \cos \frac{\vartheta}{2} - (\gamma_1 + \gamma_2)} \right] \\
- \frac{\left( \gamma_i + \cos \frac{\vartheta}{2} \right) \sqrt{(\gamma_1 + \gamma_2)^2 - \left( \sin^2 \frac{\vartheta}{2} + \gamma_1 \gamma_2 \right) 4 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}}}{2 \cos \frac{\vartheta}{2} + \gamma_1 + \gamma_2} - \frac{\left( \gamma_i^2 - \gamma_1 \gamma_2 - 2 \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right) \cos \frac{\vartheta}{2} - \left( \gamma_1 + \gamma_2 - 2 \gamma_i \cos^2 \frac{\vartheta}{2} \right)}{2 \cos \frac{\vartheta}{2} + \gamma_1 + \gamma_2} \\
- \frac{\pi c_1 c_3 \left( \gamma_1 + \gamma_3 - 2 \cos^2 \frac{\vartheta}{2} \right)}{2 \cos^2 \frac{\vartheta}{2} \sqrt{(\gamma_1 + \gamma_3)^2 - \left( \gamma_1 \gamma_3 + \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right) 4 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}}} \quad (14)$$

$$\sum_{i=1}^3 \ln \left[ \frac{\left( \gamma_i - \cos \frac{\vartheta}{2} \right) \sqrt{(\gamma_1 + \gamma_3)^2 - \left( \sin^2 \frac{\vartheta}{2} + \gamma_1 \gamma_3 \right) 4 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}}}{2 \cos \frac{\vartheta}{2} - (\gamma_1 + \gamma_3)} + \frac{\left( \gamma_i^2 - \gamma_1 \gamma_3 - 2 \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right) \cos \frac{\vartheta}{2} + \left( \gamma_1 + \gamma_3 - 2 \gamma_i \cos^2 \frac{\vartheta}{2} \right)}{2 \cos \frac{\vartheta}{2} - (\gamma_1 + \gamma_3)} \right] \\
- \frac{\left( \gamma_i + \cos \frac{\vartheta}{2} \right) \sqrt{(\gamma_1 + \gamma_3)^2 - \left( \sin^2 \frac{\vartheta}{2} + \gamma_1 \gamma_3 \right) 4 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}}}{2 \cos \frac{\vartheta}{2} + \gamma_1 + \gamma_3} - \frac{\left( \gamma_i^2 - \gamma_1 \gamma_3 - 2 \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right) \cos \frac{\vartheta}{2} - \left( \gamma_1 + \gamma_3 - 2 \gamma_i \cos^2 \frac{\vartheta}{2} \right)}{2 \cos \frac{\vartheta}{2} + \gamma_1 + \gamma_3}$$



$$\frac{\pi c_2 c_3 \left( \gamma_2 + \gamma_3 - 2 \cos^2 \frac{\vartheta}{2} \right)}{2 \cos^2 \frac{\vartheta}{2} \sqrt{(\gamma_2 + \gamma_3)^2 - \left( \gamma_2 \gamma_3 + \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right) 4 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}}}. \quad (14)$$

$$\sum_{i=2}^3 \ln \left[ \frac{\left( \gamma_i - \cos \frac{\vartheta}{2} \right) \sqrt{(\gamma_2 + \gamma_3)^2 - \left( \sin^2 \frac{\vartheta}{2} + \gamma_2 \gamma_3 \right) 4 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}}}{2 \cos \frac{\vartheta}{2} - (\gamma_2 + \gamma_3)} + \frac{\left( \gamma_i^2 - \gamma_2 \gamma_3 - 2 \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right) \cos \frac{\vartheta}{2} + \left( \gamma_2 + \gamma_3 - 2 \gamma_i \cos^2 \frac{\vartheta}{2} \right)}{2 \cos \frac{\vartheta}{2} - (\gamma_2 + \gamma_3)} \right] \\ - \frac{\left( \gamma_i + \cos \frac{\vartheta}{2} \right) \sqrt{(\gamma_2 + \gamma_3)^2 - \left( \sin^2 \frac{\vartheta}{2} + \gamma_2 \gamma_3 \right) 4 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}}}{2 \cos \frac{\vartheta}{2} + \gamma_2 + \gamma_3} - \frac{\left( \gamma_i^2 - \gamma_2 \gamma_3 - \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \right) \cos \frac{\vartheta}{2} - \left( \gamma_2 + \gamma_3 - 2 \gamma_i \cos^2 \frac{\vartheta}{2} \right)}{2 \cos \frac{\vartheta}{2} + \gamma_2 + \gamma_3}$$

Der Strich in  $\sum_{i=1}^3$  bedeutet, dass man nur über 1 und 2 summiert.

Die Formeln (13) und (14) zeigen, dass für  $c_1 = 1, c_2 = c_3 = 0$  und  $\gamma_1 = \gamma$   $W(\vec{e}, \vec{e}_0)$  durch den Ausdruck

$$W(\vec{e}, \vec{e}_0) = \frac{\pi}{2 \cos^2 \frac{\vartheta}{2}} \left\{ \ln \frac{\gamma + 1}{\gamma - 1} - \frac{\gamma - \cos^2 \frac{\vartheta}{2}}{\sin \frac{\vartheta}{2} \sqrt{\gamma^2 - \cos^2 \frac{\vartheta}{2}}} \right. \\ \cdot \ln \left. \frac{\sqrt{\gamma^2 - \cos^2 \frac{\vartheta}{2}} + \sin \frac{\vartheta}{2}}{\sqrt{\gamma^2 - \cos^2 \frac{\vartheta}{2}} - \sin \frac{\vartheta}{2}} \right\}. \quad (15)$$

gegeben ist. Der Wert von  $\gamma$  ist durch Formel (12) und Tabelle I gegeben. Wir wollen jetzt den Fall zweimaliger Streuung betrachten, und die Formel für die Intensitätsverteilung  $J$  in der Darstellung von SAUTER schreiben. Bedeuten  $\vec{e}_0, \vec{e}_1$ , und  $\vec{e}_2$  die Einheitsvektoren in der Richtung des einfallenden, des einmal und des zweimal gestreuten Strahles,  $R_1$  und  $R_2$  den Abstand des zweiten Streuzentrums vom ersten bzw. den Abstand des zweiten Streuzentrums vom Beobachter, ferner  $\vartheta_1$  und  $\vartheta_2$  die beiden Streuwinkel und  $\varphi$  den Winkel zwischen den beiden Streuebene. So erhalten wir mit Hilfe der Formeln für  $m_1, m_2, J_1$  und  $J_2$  in dieser Bezeichnung für die Intensitätsverteilung nach zweimaliger Streuung folgende Formel:

$$J = \frac{J_0}{R_1^2 R_2^2} \left( \frac{2e^2 Z}{mv^2} \right)^4 \left( 1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta_1}{2} \right) \left( 1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta_2}{2} \right) (1 - \beta^2)^2 \cdot \\ \cdot \left[ 1 + \frac{\alpha^2 Z^2}{16 \pi^2} \frac{\beta^2 (1 - \beta^2) \sin \vartheta_1 \sin \vartheta_2 \cos \varphi}{\left( 1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta_1}{2} \right) \left( 1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta_2}{2} \right)} \cdot \frac{W(\vec{e}_0, \vec{e}_1) W(\vec{e}_1, \vec{e}_2)}{U(\vec{e}_0, \vec{e}_1) U(\vec{e}_1, \vec{e}_2)} \right] \cdot (16) \\ \cdot U^2(\vec{e}_0, \vec{e}_1) U^2(\vec{e}_1, \vec{e}_2).$$

In dieser Formel ist  $\alpha$  die Feinstrukturkonstante. Alle anderen Symbole haben dieselbe Bedeutung wie in den früheren Formeln. Der Faktor von  $\cos \varphi$  im Klammerausdruck von (16) gibt uns die Asymmetrie  $\delta_H$  des Hartreeschen oder Thomas—Fermischen Feldes

$$\delta_H = \frac{\alpha^2 Z^2}{16 \pi^2} \frac{\beta^2 (1 - \beta^2) \sin \vartheta_1 \sin \vartheta_2}{\left( 1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta_1}{2} \right) \left( 1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta_2}{2} \right)} \cdot \frac{W(\vec{e}_0, \vec{e}_1) W(\vec{e}_1, \vec{e}_2)}{U(\vec{e}_0, \vec{e}_1) U(\vec{e}_1, \vec{e}_2)}. \quad (17)$$



Die Formeln (11) und (14) für entsprechende Indices erlauben uns die Asymmetrie  $\delta_H$  für das Hartreesche oder das Thomas—Fermische Feld zu berechnen. Für  $\lim \gamma_i \rightarrow 1$  und  $\sum_{i=1}^3 c_i = 1$  vereinfachen sich unsere Formeln für  $W$  und  $U$  wesentlich:

$$[U(\vec{e}, \vec{e}_0)]_{\gamma_i \rightarrow 1} = \frac{1}{4 \sin^2 \frac{\vartheta}{2}} \quad \text{und} \quad [W(\vec{e}, \vec{e}_0)]_{\gamma_i \rightarrow 1} = - \frac{\ln \sin \frac{\vartheta}{2}}{\cos^2 \frac{\vartheta}{2}}. \quad (18)$$

Setzt man diese Ausdrücke in die Formel (16) für die Intensitätsverteilung  $J$  nach zweimaliger Streuung ein, so ist

$$J_c = \frac{J_0}{R_1^2 R_2^2} \left( \frac{e^2 Z}{2mv^2} \right)^4 (1 - \beta^2)^2 \frac{1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta}{2}}{\sin^4 \frac{\vartheta}{2}} \cdot \frac{1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta}{2}}{\sin^4 \frac{\vartheta}{2}} \cdot \left[ 1 + \alpha^2 Z^2 \beta^2 (1 - \beta^2) \frac{\sin^2 \frac{\vartheta_1}{2} \operatorname{tg}^2 \frac{\vartheta_1}{2} \ln \sin^2 \frac{\vartheta_1}{2}}{1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta_1}{2}} \frac{\sin^2 \frac{\vartheta_2}{2} \operatorname{tg}^2 \frac{\vartheta_2}{2} \ln \sin^2 \frac{\vartheta_2}{2}}{1 - \beta^2 \sin^2 \frac{\vartheta_2}{2}} \cos \varphi \right]. \quad (19)$$

Diese Formel für die Intensitätsverteilung  $J_c$  nach zweimaliger Streuung für das Coulombfeld zeigt, dass der Faktor von  $\cos \varphi$  im Klammerausdruck von (19) genau mit der Asymmetrie  $\delta_c$  Formel (1) übereinstimmt. Zum Schlusse wollen wir noch den Spezialfall erwähnen, dass beide Streuungen unter rechtem Winkel erfolgen. Dieser Spezialfall ist für die experimentelle Prüfung sehr wichtig. Wegen des komplizierten Baues der Integrale  $U$  und  $W$  für das Atompotential (10), begnügen wir uns hier mit  $c_1 = 1$  und  $c_2 = c_3 = 0$ . Diese Beschränkung entspricht dem Spezialfalle, dass die reduzierte effektive Kernladung ( $Z_p/Z$ ) durch eine eingliedrige Exponentialfunktion gegeben ist.  $U(\vec{e}_0, \vec{e})$  ist durch (11) und  $W(\vec{e}_0, \vec{e})$  durch (15) gegeben. Dieser Spezialfall gibt für den Abschirmungsfaktor ( $\delta_H/\delta_c$ ) folgende Formel:

$$\frac{\delta_H}{\delta_c} = \left( \frac{\gamma}{\ln 2} \right)^2 \left( \ln \frac{\gamma + 1}{\gamma - 1} - \frac{2\gamma - 1}{\sqrt{2\gamma^2 - 1}} \ln \frac{\sqrt{2\gamma^2 - 1} + 1}{\sqrt{2\gamma^2 - 1} - 1} \right)^2. \quad (20)$$

Dabei ist

$$\gamma = 1 + \frac{1}{8\pi^2} \left( \frac{\lambda b}{\mu} \right)^2, \quad (21)$$

wobei  $\lambda$  die Wellenlänge der einfallenden Elektronen bedeutet. Die numerischen Werte für  $b$  sind in Tabelle II zu finden.

Tabelle II

Der Abschirmungsfaktor  $(\delta_H/\delta_c)$  Formel (20) als Funktion von  $(\lambda b/\mu)$

$(\lambda b/\mu)$	1	2	3	4	5	8	10	15	20
$(\delta_H/\delta_c)$	0,996	0,942	0,862	0,759	0,651	0,381	0,261	0,105	0,046

Tabelle II zeigt, dass  $(\delta_H/\delta_c)$  mit zunehmenden  $\gamma$  monoton vom Wert 1 gegen 0 abnimmt. Tabelle III gibt den Abschirmungsfaktor  $(\delta_H/\delta_c)$  Formel (20) als eine Funktion von  $(\lambda/a_0)$  für verschiedene Ordnungszahlen  $Z$ ,  $a_0$  ist der kleinste Bohrsche Wasserstoffradius. Die entsprechenden reduzierten effektiven Kernladungen  $(Z_p/Z)$  sind in Tabelle I gegeben.

Tabelle III

Der Abschirmungsfaktor  $(\delta_H/\delta_c)$  Formel (20) als Funktion von  $(\lambda/a_0)$  für verschiedene Ordnungszahlen

$(\lambda/a_0)$	1	2	3	4	5	8	10	15	20	
$(\delta_H/\delta_c)$	0,922	0,700	0,473	0,309	0,202	0,062	0,036	0,078	0,003	$Z = 2$
$(\delta_H/\delta_c)$	0,940	0,748	0,535	0,366	0,248	0,081	0,042	0,011	0,004	$Z = 7$
$(\delta_H/\delta_c)$	0,936	0,744	0,528	0,359	0,243	0,080	0,043	0,011	0,004	$Z = 8$
$(\delta_H/\delta_c)$	0,932	0,730	0,513	0,345	0,231	0,073	0,038	0,009	0,004	$Z = 9$
$(\delta_H/\delta_c)$	0,914	0,677	0,448	0,286	0,184	0,052	0,028	0,007	0,003	$Z = 10$
$(\delta_H/\delta_c)$	0,914	0,677	0,447	0,286	0,182	0,052	0,028	0,006	0,002	$Z = 24$

Zum Schluss bleibt mir die angenehme Pflicht, Herrn Prof. Dr. P. GOMBÁS für sein Interesse an dieser Arbeit meinen herzlichen Dank auszusprechen. Ich danke ebenfalls Herrn Prof. Dr. A. KÓNYA für interessante Diskussionen.



## LITERATUR

1. N. F. MOTT, Proc. Roy. Soc. London, A **124**, 425, 1929; **135**, 429, 1932.
2. F. SAUTER, Ann. d. Physik., **18**, 61, 1933.
3. R. H. DALITZ, Proc. Roy. Soc., A, **206**, 509, 1951.
4. P. GOMBÁS, Die statistische Theorie des Atoms und ihre Anwendungen, Springer, Wien, 1949.
5. J. HOLTSMARK, Z. Physik, **55**, 437, 1929; **66**, 49, 1930.
6. A. E. RUARK, Phys. Rev., **57**, 62, 1940.
7. G. MOLIÈRE, Z. Naturforsch., **2a**, 133, 1947.
8. S. ROZENTAL, Z. Physik, **98**, 42, 1935.
9. W. J. BYATT, Phys. Rev., **104**, 1298, 1956.

О ПОЛЯРИЗАЦИОННОМ ЭФФЕКТЕ МОТТА ПРИ РАССЕЯНИИ ЭЛЕКТРОНОВ  
НА АТОМАХ ТОМАСА—ФЕРМИ И ХАРТРИ

Т. ТИЕТЗ

Резюме

В данной работе исследуется вопрос влияния электронной оболочки рассеивающего атома на асимметрический эффект. Так как при экспериментальном исследовании всегда наблюдается рассеяние под углом  $90^\circ$ , в работе освещается и этот случай. Ход потенциала внутри атома определяется по Хартри или Томасу—Ферми. Определение хода потенциала не предоставляет принципиальных затруднений. Применение соответствующих приближенных методов для определения рассматриваемого потенциала внутри атома обладает тем преимуществом, что все встречающиеся интегралы могут быть представлены в замкнутой форме, и, в результате, соответствующим предельным переходом в лимите получается чистое кулоновское поле. Особенно удобным для исследования асимметрического эффекта является метод отталкивания Борна—Дирака в представлении Саутера. Преимущество последнего перед современной трактовкой Далитцем метода отталкивания Борна—Дирака заключается в его простоте и наглядности, и он является вполне достаточным для точной интерпретации асимметрического эффекта.

## ÜBER DIE STREUUNG DER ELEKTRONEN AM LATTERSCHEN POTENTIAL DES ATOMS

Von

T. TIETZ

INSTITUT FÜR THEORETISCHE PHYSIK DER UNIVERSITÄT ŁÓDŹ, ŁÓDŹ, POLEN

(Eingegangen 14. III. 1960)

In der vorliegenden kleinen Bemerkung wird der differentielle Streuquerschnitt der Elektronen für das LATTERsche Potential des Atoms in erster BORNschen Näherung berechnet. In einer früheren Arbeit hat LATTER [1] folgendes Atompotential  $V(r)$  vorgeschlagen:

$$V(r) = -\frac{Ze^2}{r} \Phi(x) \quad \text{für} \quad \frac{Ze^2}{r} \Phi(x) > \frac{e^2}{r}$$

und

$$V(r) = -\frac{e^2}{r} \quad \text{für} \quad \frac{Ze^2}{r} \Phi(x) < \frac{e^2}{r} . \tag{1}$$

In Gleichung (1) ist  $\Phi(x)$  die Thomas-Fermische Funktion des freien neutralen Atoms. LATTER berechnete für dieses Potential  $V(r)$  numerisch die Eigenwerte der Schrödinger-Gleichung. Die numerisch berechneten LATTERschen Eigenwerte stimmen sehr genau mit den HARTREESchen so wie auch mit den empirischen überein. Es ist interessant, auf die Frage zu antworten, welche Übereinstimmung man zwischen dem differentiellen Streuquerschnitt für das LATTERsche Potential in der BORNschen Näherung und dem entsprechenden HARTREESchen differentiellen Streuquerschnitt in derselben Näherung erhält. In der BORNschen Näherung bekommt man für das LATTERsche Potential  $V(r)$  für den differentiellen Streuquerschnitt  $I(\vartheta)$  folgende Formel

$$I(\vartheta) = \left[ \frac{3^{4/3} h^2 Z^{1/3}}{2^{17/3} \pi^{2/3} e^2 m p} \left( \int_0^{x_0} \Phi(x) \sin(px) dx + \frac{1}{Z} \int_{x_0}^{\infty} \sin(px) dx \right) \right]^2 . \tag{2}$$

In dieser Gleichung ist  $Z$  die Ordnungszahl des Atoms,  $h$  ist die PLANCKsche Konstante,  $m$  die Elektronenmasse,  $e$  die Elektronenladung und  $p$  ist durch folgende Formel gegeben:

$$p = \frac{3^{2/3} h^2}{2^{7/3} \pi^{1/3} e^2 m Z^{1/3}} \cdot \frac{\sin(\vartheta/2)}{\lambda} . \tag{3}$$



In Gleichung (2), wegen Gleichung (1), ist  $x_0$  durch die Beziehung  $Z \Phi(x_0) = 1$  gegeben. Mit Hilfe der Tabelle von KOBAYASHI und TAIMA [2] für die Thomas-Fermische Funktion des freien neutralen Atoms kann man für gegebenes  $Z$  den Wert von  $x_0$  numerisch berechnen. Die exakten Werte für  $I(\vartheta)$  für gegebenes  $Z$  und gegebenes  $\frac{\sin(\vartheta/2)}{\lambda}$  kann man nur numerisch bestimmen. Hier soll die Funktion  $\Phi(x)$  durch die genaue BUCHDAHLsche [3] Approximation ersetzt werden. Für die BUCHDAHLsche Approximation der Funktion  $\Phi(x)$  kann man den Streuquerschnitt  $I(\vartheta)$  analytisch berechnen. In diesem Falle bekommt man für  $I(\vartheta)$  folgende Formel:

$$I(\vartheta) = \left( \frac{3^{4/3} h^2 Z^{1/3}}{2^{17/3} \pi^{2/3} e^2 m p} \right)^2 \left\{ \frac{A}{(A-B)(A-C)} \left[ \cos \frac{P}{A} \left( \text{Si} \frac{P}{A} (1 + Ax_0) - \text{Si} \frac{P}{A} \right) + \sin \frac{P}{A} \left( \text{Ci} \frac{P}{A} - \text{Ci} \frac{P}{A} (1 + Ax_0) \right) \right] - \frac{B}{(A-B)(B-C)} \left[ \cos \frac{P}{B} \cdot \left( \text{Si} \frac{P}{B} (1 + Bx_0) - \text{Si} \frac{P}{B} \right) + \sin \frac{P}{B} \left( \text{Ci} \frac{P}{B} - \text{Ci} \frac{P}{B} (1 + Bx_0) \right) \right] + \right. \quad (4)$$

$$\left. + \frac{C}{(A-C)(B-C)} \left[ \cos \frac{P}{C} \left( \text{Si} \frac{P}{C} (1 + Cx_0) - \text{Si} \frac{P}{C} \right) + \sin \frac{P}{C} \left( \text{Ci} \frac{P}{C} - \text{Ci} \frac{P}{C} (1 + Cx_0) \right) \right] + \frac{\cos(px_0)}{pZ} \right\}^2.$$

Die Konstanten  $A$ ,  $B$  und  $C$  haben folgende Werte  $A = 0,9288$ ,  $B = 0,1536$  und  $C = 0,05727$ ; weiter ist

$$\text{Si}(x) = \int_0^x \frac{\sin t}{t} dt \quad \text{und} \quad \text{Ci}(x) = - \int_x^\infty \frac{\cos t}{t} dt. \quad (5)$$

Wie bekannt, sind die Funktionen  $\text{Si}(x)$  und  $\text{Ci}(x)$  sehr genau tabelliert. Setzt man in Gleichung (2) für  $x_0$  den Wert  $x_0 = \infty$  ein, so bekommt man für den Streuquerschnitt  $I_0(\vartheta)$  folgenden Ausdruck:

$$I_0(\vartheta) = \left( \frac{3^{4/3} h^2 Z^{1/3}}{2^{17/3} \pi^{2/3} e^2 m p} \right)^2 \left\{ \frac{A}{(A-B)(A-C)} \left[ \cos \frac{P}{A} \left( \frac{\pi}{2} - \text{Si} \frac{P}{A} \right) + \right. \right. \quad (6)$$

$$\left. \left. + \sin \frac{P}{A} \text{Ci} \frac{P}{A} \right] - \frac{B}{(A-B)(B-C)} \left[ \cos \frac{P}{B} \left( \frac{\pi}{2} - \text{Si} \frac{P}{B} \right) + \right. \right.$$

$$\left. \left. + \sin \frac{P}{B} \text{Ci} \frac{P}{B} \right] + \frac{C}{(A-C)(B-C)} \left[ \cos \frac{P}{C} \left( \frac{\pi}{2} - \text{Si} \frac{P}{C} \right) + \right. \right.$$

$$\left. \left. + \sin \frac{P}{C} \text{Ci} \frac{P}{C} \right] \right\}^2.$$

Tabelle I

Die Werte für  $I(\vartheta)$  gemäss Gleichung (4) und die Werte für  $I_0(\vartheta)$  gemäss Gleichung (6) in  $5,66 \cdot 10^{-20}$  Einheiten im Vergleich mit den entsprechenden HARTREESchen Werten

$\frac{\sin(\vartheta/2)}{\lambda} 10^{-8}$	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5
$I(\vartheta)$ -Gleichung (4) . . . .	44042	16533	6365	3030	1499
$I_0(\vartheta)$ -Gleichung (6) . . . .	57882	15775	6111	2867	1426
$I(\vartheta)$ -HARTREE . . . . .	57888	17400	6130	2600	1340
$\frac{\sin(\vartheta/2)}{\lambda} 10^{-8}$ . . . .	0,6	0,7	0,8	0,9	1,0
$I(\vartheta)$ -Gleichung (4) . . . .	843	541	415	242	166
$I_0(\vartheta)$ -Gleichung (6) . . . .	881	579	448	240	168
$I(\vartheta)$ -HARTREE . . . . .	770	480	324	222	160

$I_0(\vartheta)$  ist der Streuquerschnitt, welcher dem Potential des freien neutralen Atoms entspricht. Tabelle I enthält einen Vergleich von  $I(\vartheta)$  und  $I_0(\vartheta)$  mit den entsprechenden HARTREESchen Werten [4] für  $Z = 16$ . Für diesen Wert von  $Z$  haben wir  $x_0 = 5,8130$ .

Die Resultate zeigen, dass  $I(\vartheta)$  für kleine Werte von  $\frac{\sin(\vartheta/2)}{\lambda}$  schlechtere Resultate liefert als  $I_0(\vartheta/2)$ . Für  $\frac{\sin(\vartheta/2)}{\lambda}$  gleich Null ist  $I_0(\vartheta)$  gleich einer Konstante und  $I(\vartheta)$  ist unendlich. Für  $0.2 < \frac{\sin(\vartheta/2)}{\lambda}$  sind die Werte von  $I_0(\vartheta)$  etwas besser als die Werte von  $I_0(\vartheta)$  im Vergleich mit den HARTREESchen Werten. Eine genauere Bearbeitung dieses Problems soll später erscheinen.

Der Verfasser möchte Herrn Prof. Dr. P. GOMBÁS herzlich dafür danken, ihm einen Aufenthalt in seinem Institut ermöglicht zu haben.

LITERATUR

1. R. LATTER, Phys. Rev., **99**, 510, 1955.
2. S. KOBAYASHI und T. TAIMA, Table of the Exact Values of the T—F Function, Memoirs of the Faculty of Liberal Arts and Education, Kagawa, Japan, 1957.
3. H. A. BUCHDAHL, Ann. d. Physik., **17**, 238, 1956.
4. N. F. MOTT und H. S. W. MASSEY, The Theory of Atomic Collisions, Oxford, 2nd edition, 1950; p. 188.





# ON THE SIMULTANEOUS DETERMINATION OF LIFETIME, DIFFUSIVITY AND SURFACE RECOMBINATION VELOCITY OF INJECTED CARRIERS IN SEMICONDUCTORS BY THE FLYING SPOT METHOD

By

J. GYULAI

INSTITUTE OF EXPERIMENTAL PHYSICS, UNIVERSITY OF SZEGED, SZEGED

(Received 10. IV. 1960)

The determination of bulk lifetime ( $\tau$ ), ambipolar diffusivity ( $D_0$ ) and surface recombination velocity ( $s$ ) is an important problem in semi-conductor research [1]. A convenient photoelectric method of studying these quantities is the Flying Spot Method (FSM) proposed by ADAM [2]. According to his results the FSM renders possible the simultaneous measurement of  $D_0$  and  $\tau$ , but, as is shown by SOROKIN [3] and the present paper as well, the considerations of ADAM have been restricted to zero surface recombination velocity. In order to generalize the FSM for surface recombination velocities differing from zero and to avoid the Fourier series form of the solution of the corresponding continuity equation given in reference [3], investigations have been carried out resulting in a solution of a form convenient in experimental studies<sup>1</sup>, using the results of VAN ROOSBROECK [4].

According to these the small signal differential equation of added carrier concentration ( $\delta p$ ),

$$\partial \delta p / \partial t = D_0 \operatorname{divgrad} \delta p - \delta p / \tau, \quad (1)$$

is to be solved in a semi-infinite solid, when a normalized<sup>2</sup>, steady line source (at  $x = x_s$ ,  $z = z_s$  and parallel to the  $y$ -axis) moves along the  $x$ -axis with uniform velocity  $c$ . The fulfilment of the condition

$$D_0 \partial \delta p / \partial z = s \delta p \quad \text{in the plane } z = 0 \quad (2)$$

is required. By introducing dimensionless variables,

$$\delta P = \delta p / (n_0 - p_0), \quad U = t / \tau, \quad X = x / L, \quad Y = y / L, \quad z = z / L, \quad L = (D_0 \tau)^{1/2}$$

$$\text{and } S = s / v_D, \quad v_D = L / \tau$$

<sup>1</sup> The present solution has also the advantage of lacking further assumptions concerning the separability of continuity equation (1) and the imaginary character of the roots of the trigonometric equation in reference [3].

<sup>2</sup> I.e.  $(n_0 - p_0) L^3$  carrier pairs per length  $L$  ( $L$  denotes the diffusion length,  $n_0$  and  $p_0$  are the carrier concentrations of thermal origin).



(the drift velocity was denoted by  $v_D$ ), we have

$$\partial \delta P / \partial U = \text{div grad } \delta P - \delta P \quad (3)$$

with

$$\partial \delta P / \partial Z = S \delta P, \text{ when } Z = 0. \quad (4)$$

Upon using the results of reference [4] and introducing a new system of co-ordinates ( $\bar{X} = X - (c/L)t = X - (c\tau/L)U \equiv X - aU$ ,  $\bar{Y} = Y$ ,  $\bar{Z} = Z$ ,  $\bar{X}_s = \bar{Z}_s = 0$ ) moving together with the source — a system in which the state is stationary — the solution desired has the following form, written as the corresponding Green's function (having a detector at  $\bar{X} = \bar{Z} = 0$ ):

$$\begin{aligned} \bar{G}(\bar{X}, 0; 0, 0) &= \pi^{-1} \exp[-(a/2)\bar{X}] \\ &\int_0^\infty \exp(-S\zeta) K_1[(\bar{X}^2 + \zeta^2)^{1/2} (1 + a^2/4)^{1/2}] \cdot \zeta \cdot (\bar{X}^2 + \zeta^2)^{1/2} d\zeta^3. \end{aligned} \quad (5)$$

For  $\bar{X} \gg S^{-1}$ , just as in reference [4], the following approximation is valid:

$$\bar{G} \approx \exp[-(a/2)\bar{X}] \cdot K_1[|\bar{X}|(1 + a^2/4)^{1/2}] \cdot (\pi \bar{X} S^2)^{-1}. \quad (6)$$

Using an approximation for  $K_1(z) \sim (\pi/2z)^{1/2} \exp(-z)$  and introducing again the quantities having dimensions, the added carrier concentration  $\delta p = (g/D_0)\bar{G}$  ( $g$  is the rate of generation per unit length) will have the form:

$$\begin{aligned} \delta p &\approx g D_0^{1/2} / [(2\pi)^{1/2} \tau^{1/2} s^2 ((c/2D_0)^2 + 1/D_0\tau)^{1/4}] \bar{x}^{-3/2} \cdot \\ &\cdot \exp[-(c/2D_0)\bar{x} - |\bar{x}|((c/2D_0)^2 + 1/D_0\tau)^{1/2}] \end{aligned} \quad (7)$$

i. e.

$$\delta p \sim \exp[-(c/2D_0)\bar{x} - |\bar{x}|((c/2D_0)^2 + 1/D_0\tau)^{1/2}]. \quad (7a)$$

(7a) makes the measurement of  $D_0$  and  $\tau$  possible by the help of the plot of the logarithm of detector response versus  $\bar{x} = x - ct$ . Denoting the slopes of this curve by  $L_1$  and  $L_2$ ,<sup>4</sup> which corresponds to the voltage drop before and behind the source, the following simple relations are valid [2]:

$$\begin{aligned} L &= (D_0\tau)^{1/2} = (L_1 L_2)^{1/2}, \\ D_0 &= c/(1/L_1 - 1/L_2), \\ \tau &= (L_2 - L_1)/c. \end{aligned}$$

<sup>3</sup>  $K_\nu(z)$  = Bessel function of the second kind for imaginary argument.

<sup>4</sup>  $L_2$  should denote the absolute value of the slope behind the source.

On comparing (5) with references [2] and [4], it can also be seen that, for  $c = 0$  or  $s = 0$ , (5) reduces to the results of VAN ROOSBROECK or to those of ADAM.

As the method is not essentially based on the steady-state photoelectric effect (this can be observed only in the moving system of co-ordinates), it

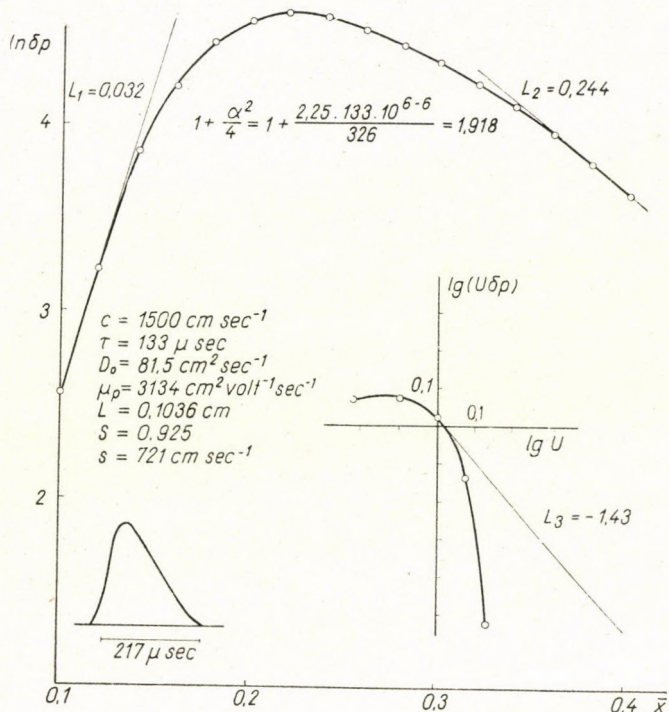


Fig. 1. The oscillogram shows the voltage drop corresponding to the pairs generated on the surface of an n-Ge sample by the FSM. The curve  $\ln \delta p$  versus  $X$  corresponds to eq. (7a) and the curve  $\lg(U \delta p)$  versus  $\lg U$  to eq. (9). The hole mobility  $\mu_p$  was calculated by using the Einstein relation

renders also possible measurement of  $s$  at the same time. Denoting the number of pairs generated per unit length by  $N$  and using the corresponding Green's function,  $G(X, Z, U; X_s, Z_s)$ , it can be shown that

$$\delta p / (N/L^2) = G(0, 0, U; aU, 0)$$

$$= (2\pi U^{-1} \exp[-(1 + a^2/4)U] \{1 - \pi^{1/2} S U^{1/2} \exp(S^2 U) [1 - \operatorname{erf}(S U^{1/2})]\}), \quad (8)$$

here  $\operatorname{erf}(x) = 2\pi^{-1/2} \int_0^x \exp(-t^2) dt$ .



As the shape of the curve  $G(0, 0, U; a U, 0)$  shows an appreciable dependence on  $S$  if plotting the product of elapsed time and detector response against elapsed time both in logarithmic scale, the determination of  $S$  (or  $s$ ) is possible. Namely the slope ( $L_3$ ) of this curve at  $V = \ln U$  (using an asymptotic expansion of  $\text{erf}(x)$ ) is of the following simple form:

$$L_3 = \frac{\partial \ln [e^V G(0, 0, U; a U, 0)]}{\partial V}$$

$$\sim - (1 + a^2/4) e^V - \frac{4S^4 e^{2V} - 12S^2 e^V - 15/2}{4S^4 e^{2V} - 6S^2 e^V + 15}$$

One of our experimental curves that may be referred to as an example, is to be seen in Fig. 1. Details and some more experimental results will be published later [5].

The author is indebted to Prof. Dr. A. BUDÓ, Director of this Institute, for his kind interest, to Drs. J. TAUC, E. ANTONČIK and S. KOC (Prague), as well as to Dr. Z. BODÓ (Budapest) for their helpful advice. Thanks are due to the Hungarian Academy of Sciences for granting the author a scholarship in Czechoslovakia that made the useful discussions possible.

#### REFERENCES

1. See e.g. Z. BODÓ, *Acta Phys. Hung.*, **II**, 1, 1960.
2. G. ADAM, *Z. Naturforsch.*, **9a**, 617, 1954.
3. O. B. СОРОКИН, *ЖТФ*, **26**, 2473, 1956.
4. W. VAN ROOSBROECK, *J. Appl. Phys.*, **26**, 380, 1955.
5. J. GYULAI and J. LANG, *Acta Phys. et Chem. Szeged* (to be published).

# ÜBER DIE ELEKTRONENSTRUKTUR DES SCHWEFELATOMS

Von

R. GÁSPÁR

FORSCHUNGSGRUPPE FÜR THEORETISCHE PHYSIK DER UNGARISCHEN AKADEMIE DER WISSENSCHAFTEN,  
BUDAPEST

(Eingegangen: 27. IV. 1960)

Die Kenntnis der Elektronenstruktur des Schwefelatoms ist zur Durchführung zahlreicher quantenchemischer Berechnungen erforderlich. Von den Elementen grösserer Ordnungszahl, die in der VI. Spalte des periodischen Systems auftreten, haben bisher nur das Poloniumatom und das Se-Atom eine Bestimmung der Elektronenstruktur erfahren, wobei dieselbe im ersten Falle auf Grund eines universalen Potentialfeldes [1], im zweiten hingegen mit Hilfe einer Variationsmethode [2] geschah. Eingehende Untersuchungen sind natürlich bezüglich der Elektronenstruktur des Sauerstoffatoms durchgeführt worden. Für dieses Element sind Berechnungen sowohl mit der Variationsmethode als auch mit der »self-consistent field« Methode angestellt worden, ausserdem hat man die Struktur desselben auch auf Grund des universalen Potentialfeldes bestimmt [3]. Zweck der vorliegenden Arbeit ist es, die Elektronenstruktur des Schwefelatoms auf Grund des universalen Potentialfeldes zu bestimmen. Neuerdings hat für das Schwefelatom auch S. F. BOYS Rechnungen durchgeführt, und zwar mit einer modifizierten Variationsmethode, welche auch die Konfigurationswechselwirkung berücksichtigt [4].

Die einzelnen Zustände werden von den Elektronen des Schwefelatoms der folgenden Konfiguration gemäss ausgefüllt:

$$(1s)^2 (2s)^2 (2p)^6 (3s)^2 (3p)^4.$$

Die radialen Eigenfunktionen der einzelnen Zustände werden durch die radiale Schrödingersche Gleichung

$$\frac{d^2 f}{dx^2} + \left[ \varepsilon + \frac{\gamma}{x} \frac{e^{-\lambda_0 x}}{1 + A_0 x} + \xi \frac{e^{-ax}}{1 + Ax} - \frac{l(l+1)}{x^2} \right] f = 0 \quad (1)$$

bestimmt. In dieser Differentialgleichung ist

$$\varepsilon = 2E\mu^2 e^{-2} a_0^{-1}; \quad \gamma = 2Z\mu a_0^{-1} \quad ; \quad \xi = \frac{8}{3} \kappa_a C \cdot 0,8853^2 e^{-2} \quad (2)$$

$$x = \frac{r}{\mu}; \quad \mu = \frac{0,8853 a_0}{Z^{1/3}}; \quad \kappa_a = 0,7386 e^2.$$



Tabelle I

Die radialen Eigenfunktionen  $f$  der  $s$ -Elektronen des S-Atoms und die radiale Dichte  $D$  des S-Atoms.  $f$  in atomaren Einheiten von  $1/a_0$ ;  $D$  in atomaren Einheiten von  $1/a_0^3$ ;  $x$  in dimensionslosen Längeneinheiten

$x$	$f$			$D$	$x$	$f$			$D$
	1s	2s	3s			1s	2s	3s	
0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,540	1,216	-0,658	-0,210	12,905
0,006	0,256	0,071	0,021	0,142	0,576	1,069	-0,779	-0,245	13,420
0,012	0,495	0,136	0,041	0,531	0,612	0,936	-0,890	-0,276	14,024
0,018	0,718	0,198	0,059	1,116	0,648	0,818	-0,992	-0,304	14,666
0,024	0,925	0,255	0,076	1,855	0,684	0,712	-1,083	-0,328	15,307
0,030	1,118	0,308	0,092	2,709	0,720	0,618	-1,164	-0,348	15,914
0,036	1,297	0,356	0,107	3,646	0,756	0,536	-1,236	-0,364	16,461
0,042	1,464	0,401	0,120	4,640	0,792	0,464	-1,298	-0,376	16,931
0,048	1,617	0,443	0,133	5,665	0,828	0,401	-1,351	-0,386	17,312
0,054	1,759	0,480	0,144	6,703	0,864	0,346	-1,396	-0,391	17,598
0,060	1,890	0,514	0,154	7,736	0,900	0,298	-1,432	-0,394	17,785
0,066	2,010	0,546	0,163	8,752	0,936	0,256	-1,462	-0,394	17,875
0,072	2,120	0,573	0,172	9,739	1,008	0,189	-1,500	-0,385	17,777
0,078	2,221	0,598	0,179	10,687	1,080	0,138	-1,514	-0,366	17,353
0,084	2,313	0,620	0,186	11,591	1,152	0,101	-1,510	-0,340	16,665
0,090	2,396	0,640	0,191	12,444	1,224	0,073	-1,489	-0,307	15,778
0,108	2,600	0,683	0,204	14,665	1,226	0,052	-1,455	-0,268	14,756
0,126	2,743	0,705	0,210	16,352	1,368	0,037	-1,411	-0,225	13,655
0,144	2,836	0,710	0,211	17,418	1,440	0,025	-1,360	-0,178	12,522
0,162	2,886	0,700	0,208	18,216	1,512	0,016	-1,304	-0,130	11,397
0,180	2,910	0,676	0,200	18,512	1,584	0,009	-1,243	-0,079	10,308
0,198	2,888	0,642	0,189	18,485	1,656	0,002	-1,181	-0,028	9,279
0,216	2,852	0,598	0,175	18,210	1,728		-1,117	-0,024	8,321
0,234	2,797	0,546	0,158	17,755	1,800		-1,053	0,075	7,447
0,252	2,727	0,488	0,140	17,183	1,872		-0,990	0,126	6,660
0,270	2,646	0,424	0,120	16,544	1,944		-0,928	0,175	5,961
0,288	2,556	0,356	0,099	15,883	2,016		-0,868	0,224	5,348
0,324	2,360	0,212	0,054	14,616	2,088		-0,810	0,271	4,819
0,360	2,153	0,061	0,007	13,585	2,160		-0,775	0,316	4,366
0,396	1,946	-0,092	-0,040	12,856	2,304		-0,651	0,400	3,671
0,432	1,745	-0,242	-0,086	12,458	2,448		-0,559	0,477	3,211
0,468	1,556	-0,388	-0,130	12,366	2,592		-0,477	0,545	2,933
0,504	1,379	-0,527	-0,172	12,534					



Tabelle I (Fortsetzung)

x	f			D	x	f			D
	1s	2s	3s			1s	2s	3s	
2,736		-0,405	0,604	2,793	7,776			0,400	1,371
2,880		-0,343	0,655	2,749	8,064			0,368	1,228
3,024		-0,290	0,698	2,770					
3,168		-0,244	0,734	2,831	8,640			0,309	0,980
3,312		-0,205	0,763	2,911	9,216			0,259	0,776
					9,792			0,215	0,612
3,456		-0,171	0,785	2,997	10,368			0,178	0,480
3,600		-0,143	0,802	3,079	10,944			0,147	0,376
3,744		-0,120	0,813	3,151	11,520			0,121	0,294
3,888		-0,100	0,820	3,208	12,096			0,100	0,229
4,032		-0,083	0,822	3,248	12,672			0,082	1,178
4,176		-0,069	0,821	3,270	13,248			0,067	0,138
4,320		-0,057	0,816	3,275	13,824			0,055	0,107
					14,400			0,045	0,083
4,608		-0,039	0,799	3,235	14,976			0,036	0,064
4,896		-0,027	0,773	3,139					
5,184		-0,018	0,741	3,001	16,128			0,024	0,038
5,472		-0,012	0,705	2,833	17,280			0,015	0,023
5,760		-0,008	0,666	2,647	18,432			0,010	0,014
6,048		-0,004	0,626	2,451	19,584			0,006	0,008
6,336		-0,002	0,586	2,253	20,736			0,003	0,005
6,624			0,546	2,058	21,888				0,003
6,912			0,507	1,870	23,040				0,002
7,200			0,470	1,692	24,192				0,001
7,488			0,434	1,525					

In (2) bedeutet  $r$  den Abstand des Elektrons vom Kern,  $Z = 16$  ist die Ordnungszahl des Schwefelatoms und  $E$  seine Energie.  $f$  ist die radiale Eigenfunktion, und es gilt  $\lambda_0 = 0,1837$ ;  $A_0 = 1,05$ ;  $\alpha = 0,04$ ;  $A = 9$  und  $C = 3,1a_0^{-1}$  sind Konstanten und  $l$  ist die Nebenquantenzahl. Das zweite und das dritte Glied in den eckigen Klammern stammen vom universellen Potential; über die damit zusammenhängenden Probleme gibt die Arbeit [5] eingehendere Auskunft.

Die Differentialgleichung (1) muss unter den folgenden Randbedingungen gelöst werden:

$$\begin{aligned}
 f(0) = f'(0) = f^{(l-1)}(0) &= 0, \\
 f^{(l)}(0) &= \text{konstant}, \\
 \lim_{x \rightarrow 0} f(x) &= 0.
 \end{aligned}
 \tag{3}$$



Tabelle II

Die radialen Eigenfunktionen  $f$  der  $p$ -Elektronen des S-Atoms und das universelle Potential  $V$  des S-Atoms.  $f$  in atomaren Einheiten von  $1/a^3/2$ ;  $V$  in atomaren Einheiten von  $1/a^3/2$  in dimensionslosen Längeneinheiten

$x$	$f$		$V$	$x$	$f$		$V$
	$2p$	$3p$			$2p$	$3p$	
0,000	0,000	0,000		0,540	1,203	0,279	12,831
0,006	0,001	0,000	1864,61	0,576	1,256	0,289	11,698
0,012	0,002	0,001	927,554				
0,018	0,005	0,001	615,111	0,612	1,303	0,296	10,712
0,024	0,009	0,002	458,872	0,648	1,342	0,301	9,849
0,030	0,014	0,003	365,094	0,684	1,376	0,305	9,088
0,036	0,020	0,005	302,553	0,720	1,404	0,306	8,412
0,042	0,026	0,006	257,880	0,756	1,425	0,306	7,810
0,048	0,034	0,008	224,369	0,792	1,442	0,304	7,271
0,054	0,042	0,010	198,301	0,828	1,454	0,300	6,786
0,060	0,051	0,012	177,447	0,864	1,461	0,295	6,348
0,066	0,061	0,015	160,384	0,900	1,464	0,289	5,951
0,072	0,071	0,017	146,166	0,936	1,463	0,281	5,590
0,078	0,082	0,020	134,137				
0,084	0,093	0,023	123,831	1,008	1,451	0,262	4,959
0,090	0,106	0,026	114,899	1,080	1,428	0,240	4,428
				1,152	1,395	0,214	3,976
0,108	0,145	0,036	94,080	1,224	1,355	0,185	3,589
0,126	0,187	0,046	79,233	1,296	1,309	0,154	3,255
0,144	0,233	0,057	68,123	1,368	1,259	0,120	2,964
0,162	0,281	0,069	59,508	1,440	1,206	0,088	2,709
0,180	0,331	0,081	52,637	1,512	1,151	0,053	2,485
0,198	0,382	0,093	47,037	1,584	1,096	0,018	2,287
0,216	0,433	0,106	42,390	1,656	1,040	-0,017	2,110
0,234	0,485	0,118	38,474	1,728	0,984	-0,052	1,953
0,252	0,537	0,131	35,134	1,800	0,930	-0,086	1,812
0,270	0,588	0,143	32,254	1,872	0,876	-0,120	1,685
0,288	0,639	0,155	29,746	1,944	0,825	-0,154	1,570
				2,016	0,775	-0,186	1,466
0,324	0,737	0,178	25,602	2,088	0,727	-0,218	1,372
0,360	0,831	0,200	22,326	2,160	0,681	-0,249	1,286
0,396	0,919	0,220	19,678				
0,432	1,000	0,238	17,500	2,304	0,595	-0,308	1,135
0,468	1,075	0,254	15,682	2,448	0,518	-0,362	1,009
0,504	1,142	0,267	14,145	2,592	0,449	-0,411	0,901

Tabelle II (Fortsetzung)

$x$	$f$		$V$	$x$	$f$		$V$
	$2p$	$3p$			$2p$	$3p$	
2,736	0,388	-0,456	0,809	9,792		-0,360	0,053
2,880	0,335	-0,496	0,730	10,368		-0,323	0,047
3,024	0,288	-0,532	0,661	10,944		-0,289	0,042
3,168	0,247	-0,563	0,601	11,520		-0,257	0,038
3,312	0,212	-0,590	0,549	12,096		-0,228	0,034
				12,672		-0,203	0,031
3,456	0,181	-0,614	0,502	13,248		-0,180	0,028
3,600	0,154	-0,634	0,461	13,824		-0,159	0,026
3,744	0,132	-0,651	0,425	14,400		-0,141	0,024
3,888	0,112	-0,665	0,392	14,976		-0,124	0,022
4,032	0,096	-0,676	0,363				
4,176	0,081	-0,684	0,337	16,128		-0,097	0,019
4,320	0,069	-0,691	0,314	17,280		-0,075	0,017
				18,432		-0,058	0,015
4,608	0,050	-0,697	0,273	19,584		-0,045	0,013
4,896	0,036	-0,696	0,239	20,736		-0,034	0,012
5,184	0,026	-0,689	0,211	21,888		-0,026	0,010
5,472	0,018	-0,678	0,188	23,040		-0,020	0,009
5,760	0,013	-0,663	0,162	24,192		-0,015	0,009
6,048	0,009	-0,645	0,151	25,344		-0,012	0,008
6,336	0,006	-0,626	0,136	26,496		-0,009	0,007
6,624	0,004	-0,604	0,124	27,648		-0,006	0,006
6,912	0,002	-0,582	0,113	28,800		-0,005	0,006
7,200	0,001	-0,559	0,103	29,952		-0,003	0,005
7,488		-0,536	0,095	31,104		-0,002	0,005
7,776		-0,513	0,087	32,256		-0,001	0,005
8,064		-0,489	0,081				
8,640		-0,444	0,069				
9,216		-0,401	0,060				

Tabelle III

Die mit dem universellen Potential bestimmten Energiet Terme der Elektronen des S-Atoms und die empirische Angabe. Die Energiewerte in atomaren Einheiten von  $e^2/a_0$

	$1s$	$2s$	$3s$	$2p$	$3p$
Universelles Potential . . . . .	-90,28	-7,85	-0,588	-5,89	-0,233
Empirische Angabe	-91,2	-8,5	-0,77	-6,25	-0,43



Wir haben die Lösungen auf numerischem Wege gesucht. In den Tabellen I und II geben wir die radialen Eigenfunktionen sowie die radiale Dichte an zusammen mit der potentiellen Energie des neutralen Atoms. Abbildung 1 zeigt die radiale Dichte. Die den einzelnen Elektronenschalen entsprechenden Maxima der Dichtefunktion sind deutlich sichtbar. Die Stelle, welche der Hälfte des Gleichgewichtskernabstandes des  $S_2$ -Moleküls entspricht, ist mit

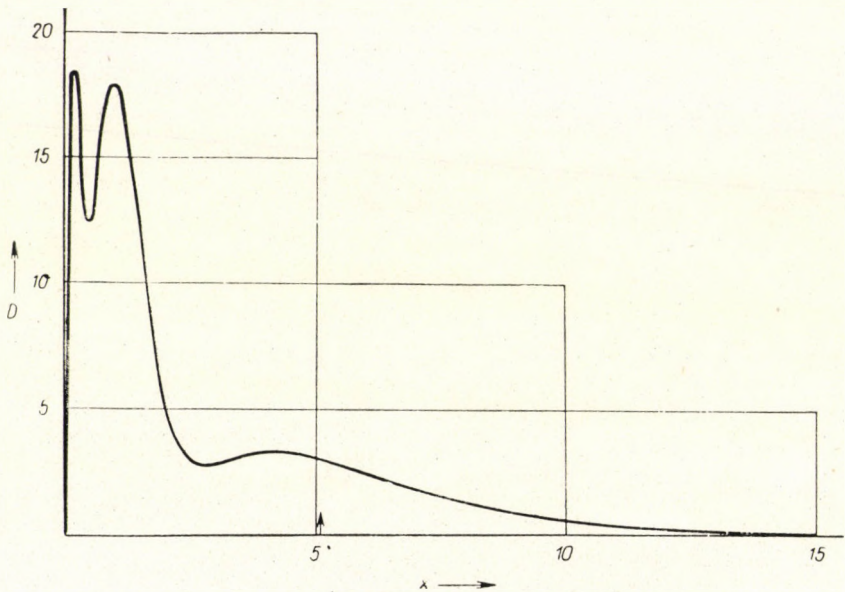


Fig. 1. Die radiale Elektronendichte des Schwefelatoms. Der Pfeil bezeichnet die Hälfte des Gleichgewichtskernabstandes des  $S_2$  Moleküls.  $D$  in  $a_0^{-1}$  atomaren Einheiten;  $x$  in dimensionsfreien Einheiten (S. den Text.)

einem Pfeil angedeutet. Der berechnete Wert der diamagnetischen Suszeptibilität des  $S^{6+}$  Ions ist gleich  $-1,56 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ Mol}^{-1}$ , während der experimentale Wert  $(-1) \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ Mol}^{-1}$  beträgt. Die Übereinstimmung ist, wie wir sehen, gut [6]. In der Tabelle III geben wir die Einelektronenergien des Schwefelatoms, welche teilweise auf Grund von experimentalen Angaben, hauptsächlich von Röntgentermwerten, berechnet [7], teilweise aber von uns mit Hilfe des universellen Potentialfeldes bestimmt worden sind. Die Übereinstimmung der Energiewerte ist von der bei Einelektronnäherungen üblichen Genauigkeit.

Zum Schluss möchte ich Fräulein J. MÁGORI und Frau I. KOCIS herzlischen Dank aussprechen für die sorgfältige und umsichtsvolle Durchführung der numerischen Berechnungen.

## LITERATUR

1. R. GÁSPÁR und K. MOLNÁR, Acta Phys. Hung., **7**, 455, 1957.
2. R. GÁSPÁR und P. GOMBÁS, Acta Phys. Hung., **2**, 335, 1953.
3. R. GÁSPÁR und É. SZABÓ, Acta Phys. Hung., **10**, 157, 1959.
4. S. F. BOYS und V. E. PRICE, Phil. Trans., **A 246**, 451, 1954.
5. R. GÁSPÁR, Acta Phys. Hung., **3**, 263, 1954.
6. LANDOLT-BÖRNSTEIN, Zahlenwerte und Funktionen, Verlag Julius Springer, Berlin, 1950, Vol. 1, Teil I, S. 397 u. ff.
7. J. C. SLATER, Phys. Rev., **98**, 1039, 1955.





# ON THE STABILITY OF THE SOLUTION OF A PHENOMENOLOGICAL OPTICAL MODEL

By

G. DOMOKOS

CENTRAL RESEARCH INSTITUTE OF PHYSICS, BUDAPEST

(Received 6. V. 1960)

In a previous paper [1] we have given the solution of the inversion problem for a phenomenological optical model under the assumption, that the scattering amplitude is imaginary and that the ray-optical approximation can be used.

For this case the semi-classical phase shifts as a function of  $\varrho$  ("impact parameter") are given by the following formula:

$$\eta(\varrho) = \ln \left[ 1 + k \int_{-1}^1 \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)^{1/2} J_0 \left( 2k\varrho \sin \frac{\vartheta}{2} \right) d \cos \vartheta \right],$$

and the distribution of the absorption coefficient can be calculated from the following integral equation:

$$\eta(\varrho^2) = \frac{1}{2} \int_{\varrho^2}^{\infty} a(r^2) \frac{dr^2}{\sqrt{r^2 - \varrho^2}}. \quad (1)$$

The solution of (1) is — putting  $y = \varrho^2$ ;  $z = r^2$  :

$$a(z) = \frac{2}{\pi} \frac{d}{dz} \int_z^{\infty} dy \eta(y) (y - z)^{-1/2} \quad (2)$$

(see ref. [1]).

Formulae (1) and (2) formed the basis of an analysis of high-energy  $\pi p$  scattering we carried out recently in order to determine the "mesic structure" of protons [2]. It is important both from a principal and a practical point of view to investigate, how sensitively this solution depends on the choice of the phases.



Take the functional derivative of (2) with respect to  $\eta$ :

$$\frac{\delta a(z)}{\delta \eta(y)} = \frac{1}{\pi} \vartheta(y-z) (y-z)^{-2/3} \quad (y \neq z), \quad (3)$$

The functional derivative does not exist at the point  $y = z$ .

On introducing the notation

$$\Delta = 2k \sin \frac{\vartheta}{2}, \quad \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)^{1/2} = N(\Delta)$$

one finds further:

$$\frac{d\eta(\varrho)}{dN(\Delta)} = kJ_0(\Delta\varrho). \quad (4)$$

Comparing (3) and (4) it is seen, that  $\delta a(z)/\delta N(\Delta)$  does not exist except at the point  $z = 0$ .

From (3) and (4), however, one concludes, that  $a(z)$  is very sensitive to the change of the phases in the neighbourhood of  $z$ ; the phases themselves depend less markedly on the angular distribution. For a given value of  $\Delta$  and  $\varrho$ ,  $\eta(s)$  is the more sensitive to changes of the angular distribution the higher  $k$  (i. e. the higher the energy of the incident particle).

As in the  $\pi p$  scattering we are mainly interested in the absorption in the central region of the protons, let us now investigate the quantity  $\frac{\delta a(0)}{\delta N(\Delta)}$ .

By means of a simple substitution one finds:

$$\frac{\delta a(0)}{\delta N(\Delta)} = \frac{2k\lambda}{\pi\sqrt{\Delta}} \int_0^{\infty} \frac{J_0(x)}{\sqrt{x}} dx,$$

and this means that the value of  $a$  at the origin is mainly determined by the scattering through *small* angles. This property is characteristic for a diffraction scattering.

Summarizing, one can conclude, that our solution of the diffraction problem is in general unstable with respect to small variations of the phase shifts. Further, the absorption coefficient at the origin is mainly determined by the small-angle scattering. Because of the well-known experimental difficulties, however, its experimentally determined value is rather uncertain.

Finally, we take pleasure in expressing our thanks to Prof. L. JÁNOSY for having called our attention to the present problem.

#### REFERENCES

1. G. DOMOKOS, manuscript, unpublished.
2. G. DOMOKOS and A. SEBESTYÉN, to be published.

# SCHWINGER'S EQUATION FOR ONE-BODY PROPAGATOR OF A SELFCOUPLED SPINOR FIELD

By

G. PÓCSIK

INSTITUTE FOR THEORETICAL PHYSICS, ROLAND EÖTVÖS UNIVERSITY, BUDAPEST

(Received 4. V. 1960)

In a preceding paper [1] the author has investigated the renormalization problems of the Thirring model completed by a meson-fermion derivative coupling and by means of a nonperturbative treatment he has determined the many-particle propagators originating from the derivative coupling. However, the nonperturbative treatment of the selfcoupled spinor field has remained an open question.

For the solution of this problem the first step is to deduce the Schwinger equation of the one-body propagator by a nonperturbative method. This is the aim of our note. In our considerations the external source method will be used [2]. Therefore, one has to introduce spinor sources  $\eta(x)$ ,  $\bar{\eta}(x)$  into the Lagrange function of the problem:

$$L_H(x) = \bar{\psi}(i\gamma^\mu \partial_\mu - m) \psi + g\bar{\psi}(\bar{\psi} \psi) \psi + \bar{\psi}\eta + \bar{\eta}\psi \quad (1)$$

( $g^{00} = -g^{ii} = 1$ ;  $m \geq 0$ ). The external sources  $\eta$ ,  $\bar{\eta}$  are anticommuting with all the fermion variables. (1) contains the field equation

$$(i\gamma^\mu \partial_\mu - m) \psi(x) + 2g(\bar{\psi}(x) \psi(x)) \psi(x) + \eta(x) = 0. \quad (2)$$

In order to arrive at our starting equation we multiply (2) by  $\bar{\psi}(x)$  on the right, take  $T$ -product and vacuum expectation value. Taking care of the commutation between  $\frac{\partial}{\partial t}$  and  $T$ , we obtain

$$(i\gamma^\mu \partial_\mu - m) G(x, y) + 2ig(0|T((\bar{\psi}(x) \psi(x))\psi(x) \bar{\psi}(y))|0) + \\ + i\eta(x) (0|\bar{\psi}(y)|0) = -\delta(x - y), \quad (3)$$

where  $G(x, y)$  means the complete one-particle propagator

$$G(x, y) = i(0|T(\psi(x) \bar{\psi}(y))|0)$$

and  $|0\rangle$  is the Heisenberg vacuum.



In the following we strive to express the second term ( $N$ ) on the left-hand side by  $G(x, y)$ . In the usual manner  $N_{\nu\bar{\nu}}(x, y)$  can be expressed by the quantities of the interaction picture as

$$N_{\nu\bar{\nu}}(x, y) = 2ig \langle 0|T(\bar{\varphi}_\alpha(x) \varphi_\alpha(x) \varphi_\nu(x) \bar{\varphi}_\nu(y)S)|0\rangle \langle 0|S|0\rangle^{-1}.$$

Here  $S$  means the  $S$ -operator and  $|0\rangle$  is the free particle vacuum. For further investigation of  $N_{\nu\bar{\nu}}(x, y)$ , the formulae

$$\frac{\delta S}{\delta \eta_\alpha(z)} = iT(\bar{\varphi}_\alpha(z)S), \quad \frac{\delta S}{\delta \bar{\eta}_\alpha(z)} = iT(\varphi_\alpha(z)S) \quad (4)$$

have to be proved, where  $\frac{\delta}{\delta \eta} \left( \frac{\delta}{\delta \bar{\eta}} \right)$  means the right (left) derivative.

For example, to prove the first let us consider the operator  $U(t_1, t_2)$  connecting the interaction and Heisenberg pictures:

$$U(t_1, t_2) = 1 + i \int_{t_2}^{t_1} \int_{-\infty}^{\infty} d^4x' L(x') U(t', t_2). \quad (5)$$

Taking the functional derivative of (5) with respect to  $\eta$ , we get

$$\frac{\delta U(t_1, t_2)}{\delta \eta_\alpha(z)} = \begin{cases} i\bar{\varphi}_\alpha(z)U(z_0, t_2) + i \int_{z_0}^{t_1} \int_{-\infty}^{\infty} d^4x' L(x') \frac{\delta U(t', t_2)}{\delta \eta_\alpha(z)} & t_2 < z_0 < t_1, \\ 0 & \text{otherwise.} \end{cases} \quad (6)$$

Now, let us write down (5) for  $t_2 = z_0$  and multiply by  $i\bar{\varphi}_\alpha(z) U(z_0, t_2)$  on the right. Comparing this equation with (6) we see that

$$\frac{\delta U(t_1, t_2)}{\delta \eta_\alpha(z)} = iU(t_1, z_0) \bar{\varphi}_\alpha(z) U(z_0, t_2) = iT(\bar{\varphi}_\alpha(z) U(t_1, t_2))$$

from which (4) immediately follows.

On the basis of (4) it is clear that  $N_{\nu\bar{\nu}}$  can be expressed by the complete Green function

$$\begin{aligned} N_{\nu\bar{\nu}}(x, y) &= 2ig \langle 0|S|0\rangle^{-1} \frac{\delta^2}{\delta \bar{\eta}_\alpha(x) \delta \eta_\alpha(x)} \langle 0|T(\varphi_\nu(x) \bar{\varphi}_\nu(y)S)|0\rangle = \\ &= 2g \langle 0|S|0\rangle^{-1} \frac{\delta^2(G_{\nu\bar{\nu}}(x, y) \langle 0|S|0\rangle)}{\delta \bar{\eta}_\alpha(x) \delta \eta_\alpha(x)} = 2g \left( \frac{\delta^2 G_{\nu\bar{\nu}}(x, y)}{\delta \bar{\eta}_\alpha(x) \delta \eta_\alpha(x)} - \frac{\delta G_{\nu\bar{\nu}}(x, y)}{\delta \eta_\alpha(x)} \cdot \right. \\ &\cdot \left. \frac{n \langle 0|S|0\rangle}{\delta \bar{\eta}_\alpha(x)} + \frac{\delta G_{\nu\bar{\nu}}(x, y)}{\delta \bar{\eta}_\alpha(x)} \cdot \frac{\delta \ln \langle 0|S|0\rangle}{\delta \eta_\alpha(x)} + \frac{G_{\nu\bar{\nu}}(x, y)}{\langle 0|S|0\rangle} \cdot \frac{\delta^2 \langle 0|S|0\rangle}{\delta \bar{\eta}_\alpha(x) \delta \eta_\alpha(x)} \right). \end{aligned}$$

Substituting (7) into (3) we obtain our final result

$$\left\{ i\gamma^\mu \partial_\mu - m + 2g \left( \frac{\delta^2}{\delta \bar{\eta}_\alpha(x) \delta \eta_\alpha(x)} + i(0|\psi_\alpha(x)|0) \frac{\delta}{\delta \eta_\alpha(x)} - i(0|\bar{\psi}_\alpha(x)|0) \frac{\delta}{\delta \bar{\eta}_\alpha(x)} + \right. \right. \\ \left. \left. + i Sp G(x,x) \right) \right\} G(x,y) = -\delta(x-y) - i\eta(x) (0|\bar{\psi}(y)|0). \quad (8)$$

This equation of the one-body propagator shows some features which differ from those of the corresponding equations of quantum electrodynamics and meson theories. These originate from the selfcoupling of the field. Consequently, the Schwinger equation must be of second order. Another deviation is that the only unknown quantity is the propagator, while the averages can be taken to be known so that we do not need to look for equations determining them (as in quantum electrodynamics), since  $(0|\psi, \bar{\psi}|0) \rightarrow 0$  for  $\eta, \bar{\eta} \rightarrow 0$ . Thus, if  $G(x, y) = G(\eta, \bar{\eta}, (0|\psi, \bar{\psi}|0), x, y, g)$  can be determined by (8), then the desired propagator can also be obtained without further difficulty, namely it is of the form  $S'_F(x, y) = G(0, 0, 0, x, y, g)$ .

#### REFERENCES

1. G. PÓCSIK, Acta Phys. Hung., **12**, 55, 1960.
2. H. UMEZAWA, Quantum Field Theory, North-Holland Publ. Co., Amsterdam, 1956.





# AN EXACT DERIVATION OF ORTHOGONAL TWO-ELECTRON ORBITALS

By

E. KAPUY

RESEARCH GROUP FOR THEORETICAL PHYSICS OF THE HUNGARIAN ACADEMY OF SCIENCES, BUDAPEST

(Received 23, V. 1960)

The energy expression and the first and second order density matrices [1, 2, 3] have recently been deduced for wave-functions built up of orthogonal antisymmetrical two-electron orbitals. The question arises as to how these can be determined. It can be shown that the orthogonal two-electron orbitals can be derived from a system of integro-differential equations in a way similar to the derivation of one-electron orbitals from the Hartree—Fock integro-differential equations.

For simplicity let us restrict ourselves to the case where the two-electron orbitals  $\psi_i(1|2)$  are real. The results can easily be generalized to the case of complex  $\psi_i(1|2)$ . (The arguments 1 and 2 include, in addition to the three space coordinates, the spin variable.) Let us assume that the system has  $N$  electrons ( $N$  is an even number). Then the normalized wave function of the system is of the form

$$\Phi = \frac{2^{\frac{N}{4}}}{\sqrt{N!}} \sum_P (-1)^P P \psi_1(1|2) \psi_2(3|4) \dots \psi_{\frac{N}{2}}(N-1|N).$$

(Here  $P$  means the permutation operators which exchange the electrons between different two-electron orbitals.)

If the two-electrons orbitals  $\psi_i(1|2)$  are orthogonal

$$\int \psi_i(1|2') \psi_j(1|2) d\tau_1 = 0, \quad \text{if } i \neq j \text{ (for all } ij \text{ pairs)} \quad (1)$$

and normalized

$$\int \psi_i(1|2) \psi_i(1|2) d\tau_1 d\tau_2 = 1, \quad \text{(for all the } i\text{'s)} \quad (2)$$

the energy expression takes the form

$$E = H(0) + \sum_i \int \psi_i(1|2) \left[ H(1) + H(2) + \frac{1}{r_{12}} \right] \psi_i(1|2) d\tau_1 d\tau_2 + \quad (3)$$

$$+ \sum_{\substack{i,j \\ j \neq i}} \int \left[ \frac{1 - P_{13}}{r_{13}} + \frac{1 - P_{23}}{r_{23}} \right] \psi_j(3'|4) \psi_j(3|4) \psi_i(1'|2') \psi_i(1|2) d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 d\tau_4.$$



(Having applied the operators  $1 - P_{13}$  and  $1 - P_{23}$  we put equal the primed coordinates with the unprimed ones and carry out the integration).

Varying the  $\psi_i(1|2)$ 's in accordance with the auxiliary conditions (1) and (2) we obtain the equations determining them. The auxiliary conditions (2) are added, in the usual way, together with the Lagrange multipliers  $-E_i$ , to the energy expression. Instead of the auxiliary conditions (1) we apply the auxiliary conditions

$$\int \psi_i(1|2) \psi_j(3|4) \psi_i(3|2) \psi_j(1|4) d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 d\tau_4 = 0, \quad \text{if } i \neq j, \quad (4)^*$$

(for all  $ij$  pairs)

with the Lagrange multipliers  $-E_{ij}$  (in symmetrized form) which, as can easily be seen, are equivalent with the former ones.  $\delta E = 0$  if the  $\psi_i(1|2)$  satisfy the following system of equations:

$$\begin{aligned} & \left\{ H(1) + H(2) + \frac{1}{r_{12}} + 2 \sum_{j \neq i} \int d\tau_3 d\tau_4 \left[ \frac{1 - P_{13}}{r_{13}} + \right. \right. \\ & \quad \left. \left. + \frac{1 - P_{23}}{r_{23}} \right] \psi_j(3'|4) \psi_j(3|4) \right\} \psi_i(1|2) = \\ & = \left\{ E_i + \sum_{j \neq i} E_{ij} \int d\tau_3 d\tau_4 [P_{13} + P_{23}] \psi_j(3'|4) \psi_j(3|4) \right\} \psi_i(1|2). \end{aligned} \quad (5)$$

Here we apply, in the same way as in (3), first the permutation operators, then, putting equal the primed coordinates with the unprimed ones, we carry out the integration. It should be noted that the expressions in brackets are different for each  $\psi_i$  due to the  $\sum_{j \neq i}$  sums.

The solutions of the coupled integro-differential equations, which are anti-symmetrical in the variables 1 and 2 and satisfy the auxiliary conditions (1) and (2) are the required  $\psi_i(1|2)$  two-electron orbitals. The  $\frac{N}{2}$  solutions belonging to the lowest  $E_i$ 's give the ground state of the system. Making some assumption for the spin states of the  $\psi_i(1|2)$ 's (e.g. that all the  $\psi_i$ 's are singlet with the spin factor  $\frac{1}{\sqrt{2}} [\alpha(1)\beta(2) - \alpha(2)\beta(1)]$ ) the  $\psi_i$ 's of 8 variables are reduced to ones of 6 variables. (If all the  $\psi_i$ 's are singlet, such solutions of the reduced system of equations (5) are to be found, which satisfy the auxiliary conditions and are symmetrical in the space coordinates.) In a manner similar to the one described

\* Note added in proof. It must not be required that the values of the integrals (4) are exactly zero! In this case, namely, the second term on the right-hand side of the equations (5) vanishes and the system of equations (5) has probably no solution. Instead it should be required that the values of the above integrals  $D_{ij}$  are small positive numbers:  $D_{ij} \ll 1$  for all pairs  $ij$  and thus the integrals  $\int \psi_i(1|2) \psi_j(1|3) d\tau_1$  can be neglected in the energy expression (3).

above the equations determining the orthogonal three-, four-, etc. electron orbitals can also be readily obtained.

To solve the system of equations (5) exactly, even for small  $N$ , is as yet a hopeless task. Therefore suitable approximate methods must be developed. Such a method is e. g. the conventional direct variational method. Building up the two-electron orbitals of orthogonal one-electron orbitals, the auxiliary conditions (1) and (4) can easily be satisfied, but nothing new can be expected as compared to the results obtained with the method of one-electron orbitals [2, 4]. Another possible way is to try to find such trial functions, which explicitly include the distance between the two electrons and at the same time are flexible enough to satisfy the auxiliary conditions (4). It should be noted that the auxiliary conditions (4) need not be satisfied exactly. It suffices if the integrals

$$D_{ij} = \int \psi_i(1|2) \psi_j(3|4) \psi_i(3|2) \psi_j(1|4) d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 d\tau_4,$$

are less than a given small number  $\varepsilon$ ; i. e.  $D_{ij} < \varepsilon$  for all  $ij$  pairs ( $i \neq j$ ). If e. g.  $\varepsilon < 10^{-4}$ , the auxiliary conditions (1) are satisfied and at the same time the energy is minimum for the given values of the variational parameters, already a good approximate solution can be obtained.

The auxiliary conditions (1) and (4) impose severe restrictions on the two-electron orbitals. If some of these are given up the energy expression (3) and the system of equations (5) become more intricate, but the approximation improves. Thus e. g. in the case of two-electron orbitals localized in the space, it is sufficient to require the orthogonality of more distant neighbours only. In this case we approach the result obtainable with non-orthogonal two-electron orbitals, without making the energy expression and the system of equations determining the  $\psi_i$ 's too complicated.

#### REFERENCES

1. A. C. HURLEY, J. LENNARD-JONES and J. A. POPLE, Proc. Roy. Soc. A. **220**, 496, 1953.
2. J. M. PARKS and R. G. PARR, J. Chem. Phys., **28**, 335, 1958.
3. E. KAPUY, Acta Phys. Hung., **9**, 237, 1958.
4. E. KAPUY, Acta Phys. Hung., **11**, 409, 1960.





# BREMSSPEKTRUM BEI STREUUNG NICHTRELATIVISTISCHER ELEKTRONEN AN EINEM ABGESCHIRMTEM COULOMBFELD

Von

T. TIETZ

INSTITUT FÜR THEORETISCHE PHYSIK DER UNIVERSITÄT-LÓDŹ, LÓDŹ, POLEN

(Eingegangen: 7. VI. 1960)

In dieser Arbeit soll untersucht werden, welchen Einfluss die Abschirmung des Kernfeldes durch die Elektronenhülle des bremsenden Atoms auf die Bremsstrahlung besitzt. Ferner wollen wir hier zur Vereinfachung von Retardierung absehen, also nicht nur die in  $v/c$  quadratischen Glieder ( $v/c$  ist die Relativgeschwindigkeit des Elektrons), sondern auch die darin linearen Glieder vernachlässigen. Dann lautet die Formel für die Gesamtintensität  $J_\nu d\nu$  in der Bornschen Näherung in der SAUTERSCHEN<sup>1</sup> Darstellung wie folgt:

$$J_\nu d\nu = \frac{d\nu}{R^2} \frac{e^2}{h^4 c^3} \frac{p}{p_0} \int d\Omega (n \times \vec{P}_0)^2 |V(\vec{P}_0)|^2, \quad (1)$$

wobei  $d\Omega$  ein Raumwinkelelement im Impulsraume bedeutet. In dieser Formel für  $J_\nu d\nu$  ist  $p_0$  der Anfangs- und  $p$  der Endimpuls,  $R$  ist die Entfernung vom Streuzentrum,  $\vec{n}$  ist die Fortschrittingsrichtung des Lichtes und  $\vec{P}_0$  steht für

$$\vec{P}_0 = \vec{p}_0 - p. \quad (2)$$

$P_0$  bedeutet den auf das feste Potentialfeld  $V(r)$  übertragenen Impuls, und  $V(\vec{P}_0)$  ist durch die bekannte Formel

$$V(P_0) = \int V(r) e^{\frac{i}{\hbar} \vec{P}_0 \cdot \vec{r}} d\tau$$

gegeben. In der Formel (1) ist  $e$  die Elektronenladung,  $h$  ist die Plancksche Konstante und  $\nu$  ist die Frequenz des Strahlungsquants. Um die noch verbleibende Integration über alle Richtungen des auslaufenden Elektrons ausführen zu können, ist die Spezialisierung auf einen bestimmten Potentialansatz notwendig. Wir beschränken uns hier auf den Fall des reinen THOMAS—FERMI-schen Feldes<sup>2</sup>

$$V(r) = -\frac{Ze^2}{r} \varphi\left(\frac{r}{\mu}\right) = -\frac{Ze^2}{r} \varphi(x). \quad (4)$$



Hier ist  $\varphi(x)$  die Thomas—Fermische Funktion des freien neutralen Atoms und  $\mu$  ist durch die Formel

$$\mu = 0.88534 a_0 Z^{-1/3} \quad (5)$$

gegeben. Hier ist  $Z$  die Ordnungszahl des Atoms und  $a_0$  der kleinste Bohrsche Wasserstoffradius. Aus mathematischen Gründen wollen wir in dieser Arbeit für die Thomas—Fermische Funktion  $\varphi(x)$  den Ansatz machen:

$$\varphi(x) = \sum_{i=1}^3 c_i e^{-b_i x}. \quad (6)$$

Mit  $c_1 = 0,255$ ,  $c_2 = 0,581$ ,  $c_3 = 0,164$  und  $b_1 = 0,246$ ,  $b_2 = 0,947$ ,  $b_3 = 4,356$  bekommen wir die ROZENTALSche [3] Approximation der Thomas—Fermischen Funktion des freien neutralen Atoms. Setzt man (4) in (3) ein, dann wird

$$V(\dot{P}_0) = - \frac{e^2 Z \hbar^2}{\pi_i} \sum_{i=1}^3 \frac{c_i}{P^2 + \left(\frac{\hbar b_i}{\mu}\right)^2}. \quad (7)$$

Nun lassen sich die Winkelintegrationen in (1) mit Hilfe von (7) in einem geeignet gewählten Koordinatensystem elementar ausführen. Man erhält schliesslich folgenden, relativ kompliziert gebauten Ausdruck für  $J, dv$ :

$$\begin{aligned} J, dv = & \frac{dv}{R^2} \frac{4 Z^2 e^6}{c^3} \frac{p^3}{p_0} \sum_{i=1}^3 c_i^2 \left\{ \frac{p_0^2 + p^2 + \frac{\hbar^2 b_i^2}{\mu^2}}{4 p_0 p} \ln \frac{(p_0 + p)^2 + \frac{\hbar^2 b_i^2}{\mu^2}}{(p_0 + p)^2 + \frac{\hbar^2 b_i^2}{\mu^2}} - \right. \\ & - 1 + \frac{\sin^2 \vartheta}{2} \left[ \frac{p_0^2 - 3p^2 - 3 \frac{\hbar^2 b_i^2}{\mu^2}}{4 p_0 p} \ln \frac{(p_0 + p)^2 + \frac{\hbar^2 b_i^2}{\mu^2}}{(p_0 - p)^2 + \frac{\hbar^2 b_i^2}{\mu^2}} + 3 - \right. \\ & \left. \left. - \frac{4 p_0^2 \frac{\hbar^2 b_i^2}{\mu^2}}{\left( p_0^2 + p^2 + \frac{\hbar^2 b_i^2}{\mu^2} \right)^2 - 4 p_0^2 p^2} \right] \right\} + \\ & + \frac{dv}{R^2} \frac{8 e^6 Z^2}{c^3} \frac{p}{p_0^3} \left\{ \frac{c_1 c_2 \mu^2}{\hbar^2 (b_2^2 - b_1^2)} \left[ \quad \right]_{2,1} + \frac{c_1 c_3 \mu^2}{\hbar^2 (b_3^2 - b_1^2)} \left[ \quad \right]_{3,1} + \right. \\ & \left. + \frac{c_2 c_3 \mu^2}{\hbar^2 (b_3^2 - b_2^2)} \left[ \quad \right]_{3,2} \right\}. \quad (8) \end{aligned}$$

Die Klammern in der letzten Formel haben folgende Bedeutung:

$$\begin{aligned}
 & \left[ \right]_{3,1} = \frac{4P_0^2 P^2 - \left( P_0^2 + P^2 + \frac{\hbar^2 b_1^2}{\mu^2} \right)^2}{8P_0 P} \ln \frac{(P_0 + P)^2 + \frac{\hbar^2 b_1^2}{\mu^2}}{(P_0 - P)^2 + \frac{\hbar^2 b^2}{\mu^2}} - \\
 & - \frac{4P_0^2 P^2 - \left( P_0^2 + P^2 + \frac{\hbar^2 b_2^2}{\mu^2} \right)^2}{8P_0 P} \ln \frac{(P_0 + P)^2 + \frac{\hbar^2 b_2^2}{\mu^2}}{(P_0 - P)^2 + \frac{\hbar^2 b_2^2}{\mu^2}} - \\
 & - \frac{\hbar^2 (b_2^2 - b_1^2)}{2\mu^2} + \frac{\sin^2 \vartheta}{2} \left[ \frac{3 \left( P_0^2 + P^2 + \frac{\hbar^2 b_1^2}{\mu^2} \right)^2 - 12P_0^2 P^2 - \frac{\hbar^2 b_1^2}{\mu^2} P_0^2}{8P_0 P} \right. \\
 & \cdot \ln \frac{(P_0 + P)^2 + \frac{\hbar^2 b_1^2}{\mu^2}}{(P_0 - P)^2 + \frac{\hbar^2 b_1^2}{\mu^2}} - \frac{3 \left( P_0^2 + P^2 + \frac{\hbar^2 b_2^2}{\mu^2} \right)^2 - 12P_0^2 P^2 - \frac{\hbar^2 b_2^2}{\mu^2} P_0^2}{8P^2 P} \\
 & \left. \cdot \ln \frac{(P_0 + P)^2 + \frac{\hbar^2 b_2^2}{\mu^2}}{(P_0 - P)^2 + \frac{\hbar^2 b_2^2}{\mu^2}} + \frac{3\hbar^2 (b_2^2 - b_1^2)}{2\mu^2} \right]. \tag{9}
 \end{aligned}$$

Die zwei anderen Klammern  $[ ]_{3,1}$  und  $[ ]_{3,2}$  bekommen wir aus  $[ ]_{2,1}$ , wenn wir den Index 2 durch 3 und 1 durch 2 ersetzen. In dieser Formel bezeichnet der Winkel  $\vartheta$  den Winkel zwischen Primärriichtung des Elektrons und Beobachtungsrichtung des Röntgenquants. Der Grenzübergang zum Coulombfelde ergibt für die Intensität der unpolarisierten Strahlung in Abhängigkeit von  $\vartheta$  folgende Formel:

$$\begin{aligned}
 J_\nu d\nu = & \frac{d\nu}{R^2} \frac{4Z^2 e^6}{c^3} \frac{p}{P_0^3} \left[ \left( \frac{P_0^2 + P^2}{2P_0 P} \ln \frac{P_0 + P}{P_0 - P} - 1 \right) + \right. \\
 & \left. + \sin^2 \frac{\vartheta}{2} \left( \frac{P_0^2 - 3P^2}{2P_0 P} \ln \frac{P_0 + P}{P_0 - P} + 3 \right) \right]. \tag{10}
 \end{aligned}$$

Dieser Ausdruck unterscheidet sich von dem SOMMERFELDSchen [4] nur um einen Faktor, welcher für die nichtrelativistische Geschwindigkeit  $v$  und  $v_0$  sowie für die vorkommenden  $Z$ -Werte annähernd gleich 1 ist. In einer späteren Arbeit soll die hier entwickelte Methode unter Verwendung der relativistischen



Wellenmechanik auch zur Behandlung der Bremsstrahlung sehr schneller Elektronen angewendet und die Formel (9) genauer betrachtet werden.

Herrn Prof. P. GOMBÁS möchte ich an dieser Stelle meinen herzlichen Dank aussprechen.

#### LITERATUR

1. F. SAUTER, Ann. d. Physik, **18**, 486, 1933.
2. P. GOMBÁS, Die statistische Theorie des Atoms und ihre Anwendungen, Springer Verlag, Wien, 1949.
3. S. ROZENTAL, Z. Phys., **98**, 742, 1936.
4. A. SOMMERFELD, Atombau und Spektrallinien, Friedr. Vieweg u. Sohn, Braunschweig, 1951.

A kiadásért felel az Akadémiai Kiadó igazgatója

Műszaki szerkesztő: Farkas Sándor

A kézirat nyomdába érkezett: 1960. VII. 30. — Terjedelem: 8,25 (A/5) ív, 16 ábra

---

51806/1960 — Akadémiai Nyomda, Budapest — Felelős vezető: Bernát György





The *Acta Physica* publish papers on physics, in English, German, French and Russian. The *Acta Physica* appear in parts of varying size, making up volumes. Manuscripts should be addressed to :

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

Correspondence with the editors and publishers should be sent to the same address. The rate of subscription to the *Acta Physica* is 110 forints a volume. Orders may be placed with "Kultura" Foreign Trade Company for Books and Newspapers (Budapest I., Fő utca 32. Account No. 43-790-057-181) or with representatives abroad.

---

Les *Acta Physica* paraissent en français, allemand, anglais et russe et publient des travaux du domaine de la physique.

Les *Acta Physica* sont publiés sous forme de fascicules qui seront réunis en volumes. On est prié d'envoyer les manuscrits destinés à la rédaction à l'adresse suivante :

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

Toute correspondance doit être envoyée à cette même adresse.

Le prix de l'abonnement est de 110 forints par volume.

On peut s'abonner à l'Entreprise du Commerce Extérieur de Livres et Journaux «Kultura» (Budapest I., Fő utca 32. — Compte-courant No. 43-790-057-181) ou à l'étranger chez tous les représentants ou dépositaires.

---

«*Acta Physica*» публикуют трактаты из области физических наук на русском, немецком, английском и французском языках.

«*Acta Physica*» выходят отдельными выпусками разного объема. Несколько выпусков составляют один том.

Предназначенные для публикации рукописи следует направлять по адресу :

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

По этому же адресу направлять всякую корреспонденцию для редакции и администрации.

Подписная цена «*Acta Physica*» — 110 форинтов за том. Заказы принимает предприятие по внешней торговле книг и газет «Kultura» (Budapest I., Fő utca 32, Текущий счет: № 43-790-057-181) или его заграничные представительства и уполномоченные.



## INDEX

- I. Berkes and I. Demeter: Small-Angle Coherent Scattering of 500 keV Electrons. — И. Беркеш и И. Деметер: Когерентное рассеяние 500 кэВ электронов под малыми углами* ..... 99
- F. Berencz: Der Beitrag der Oktupolkräfte zu den van der Waalsschen Attraktionen — Ф. Беренц: Действие октупольных сил в притяжении ван дер Ваальса* .... 103
- A. Ádám, L. Bod, Z. Szabó and L. Szeghő: A Pulsed (d, t) Neutron Source. — А. Адам, Л. Бод, З. Сабо и Л. Сеге: Импульсно-модулированный источник (d, t) нейтронов* ..... 107
- I. Tamássy-Lentei: Investigation of the Excited States of the H<sub>2</sub>-Molecule by Means of the United Atom Model. — И. Тамаш-Лентей: Исследование возбужденных состояний молекулы H<sub>2</sub> при помощи объединенной модели атома* .. 119
- I. Náray-Szabó und J. Ladik: Zusammenhang zwischen der Struktur und den physikalischen Eigenschaften des Glases IV. — И. Нарай-Сабо и Й. Ладик: Зависимость между структурой и физическими свойствами стекла IV.* ..... 131
- L. Jánossy: On the Simultaneous Distribution of the Sagittas of a Track in Emulsion in the Case of Back Ground Noise. — Л. Яноши: Об одновременном распределении отклонений следов частиц в эмульсии при наличии фона* ..... 139
- T. Tietz: Über den Mottischen Polarisierungseffekt bei der Streuung von Elektronen an Thomas-Fermischen und Hartreeschen Atomen. — Т. Титц: О поляризационном эффекте Мотта при рассеянии электронов на атомах Томаса—Ферми и Хартри* ..... 151
- Kurze Mitteilungen — Brief Reports — Kurze Mitteilungen*
- T. Tietz: Über die Streuung der Elektronen am Latterschen Potential des Atoms* ... 163
- J. Gyulai: On the Simultaneous Determination of Lifetime, Diffusivity and Surface Recombination Velocity of Injected Carriers in Semiconductors by the Flying Spot Method* ..... 167
- R. Gáspár: Über die Elektronenstruktur des Schwefelatoms* ..... 171
- G. Domokos: On the Stability of a Solution of a Phenomenological Optical Model* .. 179
- G. Pócsik: Schwinger's Equation for One-Body Propagator of a Selfcoupled Spinor Field* 181
- E. Kapuy: An Exact Derivation of Orthogonal Two-Electron Orbitals* ..... 185
- T. Tietz: Bremsspektrum bei Streuung nichtrelativistischer Elektronen an einem abgeschirmten Coulombfeld* ..... 189

# ACTA PHYSICA

ACADEMIAE SCIENTIARUM  
HUNGARICAE

ADIUVANTIBUS

Z. GYULAI, L. JÁNOSSY, I. KOVÁCS, K. NOVOBÁTZKY

REDIGIT

P. GOMBÁS

TOMUS XII

FASCICULUS 3



1960



# ACTA PHYSICA

## A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA FIZIKAI KÖZLEMÉNYEI

SZERKESZTŐSÉG ÉS KIADÓHIVATAL: BUDAPEST V., ALKOTMÁNY UTCA 21.

Az *Acta Physica* német, angol, francia és orosz nyelven közöl értekezéseket a fizika tárgyköréből.

Az *Acta Physica* változó terjedelmű füzetekben jelenik meg: több füzet alkot egy kötetet. A közlésre szánt kéziratok a következő címre küldendők:

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

Ugyanerre a címre küldendő minden szerkesztőségi és kiadóhivatali levelezés.

Az *Acta Physica* előfizetési ára kötetenként belföldre 80 forint, külföldre 110 forint. Megrendelhető a belföld számára az Akadémiai Kiadónál (Budapest V., Alkotmány utca 21. Bankszámla 05-915-111-46), a külföld számára pedig a „Kultúra” Könyv- és Hírlap Külkereskedelmi Vállalatnál (Budapest I., Fő u. 32. Bankszámla 43-790-057-181 sz.), vagy annak külföldi képviselőinél és bizományosainál.

---

Die *Acta Physica* veröffentlichen Abhandlungen aus dem Bereiche der Physik in deutscher, englischer, französischer und russischer Sprache.

Die *Acta Physica* erscheinen in Heften wechselnden Umfanges. Mehrere Hefte bilden einen Band.

Die zur Veröffentlichung bestimmten Manuskripte sind an folgende Adresse zu richten:

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

An die gleiche Anschrift ist auch jede für die Redaktion und den Verlag bestimmte Korrespondenz zu senden.

Abonnementspreis pro Band: 110 forint. Bestellbar bei dem Buch- und Zeitungs-Aussenhandels-Unternehmen »Kultura« (Budapest I., Fő u. 32. Bankkonto Nr. 43-790-057-181) oder bei seinen Auslandsvertretungen und Kommissionären.

# ANGULAR CORRELATION BETWEEN NEUTRINO AND GAMMA-QUANTUM IN *K*-CAPTURE II

By

K. NAGY

INSTITUTE OF THEORETICAL PHYSICS, ROLAND EÖTVÖS UNIVERSITY, BUDAPEST

(Presented by K. F. Novobátsky. — Received 18. I. 1960)

Using the exact Dirac electron-function for the *K*-shell, we have determined the angular correlation between neutrino and gamma-quantum following a *K*-capture. We used the  $\bar{V}-A$  combination for  $\beta$  interaction supposing the neutrino to be a backward longitudinally polarized particle.

In our earlier publications [1,2] we made detailed calculations concerning the angular correlation between neutrino and circularly polarized gamma-quantum released by electron-capture (*K*- and *L*-capture). Our results were obtained for transitions of arbitrary order. In obtaining a formula for the correlation we used two kinds of approximations:

- 1) We considered the electron as a non-relativistic particle;
- 2) We treated the nucleons in non-relativistic approximation.

The ionization energy of the *K*-electrons [3] is:

$$I = Z^2 I_0 = Z^2 \cdot 13,55 \text{ eV}, \quad (1)$$

where  $I_0$  is the ionization energy for the *K*-electron of the hydrogen atom,  $Z$  the nuclear charge. The value of  $Z^2$  is of the order  $\sim 10^3$  for atoms of medium mass, thus  $I \sim 10^4$  eV.

The value of  $I$  is smaller for light nuclei and the *L*-shell. (Only the lighter nuclei are of practical interest, as the recoil may be measured reliably only for these.) Thus the non-relativistic treatment seems to be well founded. We may ask, what have we neglected in comparison with the exact relativistic treatment? We left out all terms containing the "small" components of the electron wave function. For the *K*-shell the ratio of the squares of radial wave functions [4] is the following:

$$f_k^2/g_k^2 \sim \left( a \frac{Z}{2} \right)^2, \quad (2)$$

where  $f_k$  is the "small",  $g_k$  the "large" component of the radial wave function,  $a$  the "Feinstruktur" constant. It is evident from (2) that  $f_k^2/g_k^2 \sim 10^{-2}$  for  $Z = 25-30$ . For transitions of given order we thus neglected only terms smaller by two orders of magnitude.

The average binding energy of nucleons in the nucleus is  $\sim 10$  MeV,



the rest energy  $\sim 10^3 \text{MeV}$ . Therefore the non-relativistic approximation used for nucleons is also permissible. Our calculations are more exact in this case than they were for electrons, as we did not take zero for the "small" components of the nucleon wave function. The cause for this is that wave functions of non-relativistic particles appear in the matrix element in both the initial and in the final states, while we have one wave function of an extreme relativistic particle (neutrino) in the lepton matrix element. Matrices  $\varrho_1$  and  $\varrho_2$  exchange "small" and "large" components. Therefore retaining only the "large" components of the wave functions of nucleons, as we did for the electron, the "relativistic" nuclear matrix elements [5] disappear identically. The corresponding matrix elements for leptons do not disappear, because the "large" and the "small" components in the wave function of the neutrino are of the same magnitude. In the non-relativistic approximation used here, the "relativistic" nuclear matrix element of given order  $l$  is smaller by a factor  $v/c$  than the "ordinary" one of the same order  $l$ , thus it may be neglected ( $v$  denotes the average velocity of the nucleons in the nucleus), whereas it is comparable with the "ordinary" matrix element of order  $l+1$ . The "ordinary" and "relativistic" transitions follow different selection rules, the "ordinary" and "relativistic" matrix elements of the same order never appear together in the same type of coupling. The "relativistic" matrix element of order  $l$  appears with the "ordinary" ones of order  $l+1$ . For forbidden transitions the relativistic transitions are also important, thus the "small" components of the nucleons may not be simply neglected.

For electron captures of higher order the terms contributed by the "small" components neglected in papers [1, 2] are also of interest, their residues for nuclei of higher order have about the same value as those for the corresponding "relativistic" transitions. The latter are more important for  $K$ -capture.

The angular correlation between neutrino and gamma-quantum following a  $K$ -capture may be determined by methods applied in papers [1, 2]. We use now the exact relativistic four-component expression of the wave function for a  $K$ -electron [4]:

$$\text{For } m_e = \frac{1}{2} : \qquad \text{For } m_e = -\frac{1}{2} :$$

$$\left( \begin{array}{c} g_k(r) Y_{00} \\ 0 \\ -\frac{1}{\sqrt{3}} if_k(r) Y_{1,0} \\ -\sqrt{\frac{2}{3}} if_k(r) Y_{1,1} \end{array} \right), \qquad \left( \begin{array}{c} 0 \\ -g_k(r) Y_{00} \\ -\sqrt{\frac{2}{3}} if_k(r) Y_{1,-1} \\ -\frac{1}{\sqrt{3}} if_k(r) Y_{1,0} \end{array} \right).$$

Corresponding to  $V-A$  interaction we use the interaction Halmiltonian describing the electron capture

$$H = C_V H_V - C_A H_A, \tag{4}$$

where

$$H_V = \frac{f}{2} \int (\bar{\psi}_n \gamma_\mu \psi_p) (\bar{\psi}_\nu (1 - \gamma_5) \gamma_\mu \psi_e) dV + h. c., \tag{5}$$

$$H_A = \frac{f}{2} \int (\bar{\psi}_n i \gamma_5 \gamma_\mu \psi_p) (\bar{\psi}_\nu (1 - \gamma_5) i \gamma_5 \gamma_\mu \psi_e) dV + h. c. \tag{6}$$

The same notations are used as in papers [1, 2]. Note that in the papers mentioned we have  $i\gamma_\mu$  in the expression for  $V$  interaction. The factor  $i$  appears twice making the coefficient  $C_V$  there  $(-1)$ -times that found in (4). According to recent experimental data  $C_A/C_V \sim 1,2$  [6].

By the same considerations as in [1] and [2] we obtain for the angular correlation between neutrino and gamma-quantum emitted in  $K$ -capture

$$W(\theta, P_\gamma) = \sum_k A_k^{(\nu)} A_k^{(\gamma)} P_k(\cos\theta), \tag{7}$$

where

$$A_k^{(\gamma)} = (-1)^{j_3+1} \sum_{\lambda\lambda'} \sqrt{(2\lambda+1)(2\lambda'+1)} \langle j_3 \parallel \lambda \parallel j_2 \rangle \langle j_3 \parallel \lambda' \parallel j_2 \rangle (-1)^{l-\lambda'} P_\gamma^k \cdot (\lambda\lambda' 1 - 1 | k 0) W(j_2 j_2 \lambda\lambda'; k j_3);$$

$$A_k^{(\nu)} = (-1)^{j_1} \sum_{l'} \sum_{JJ'} \sum_{LL'} \sqrt{(2l+1)(2l'+1)} (-1)^{l+l'} \{ a_{1k}(l'l) a_1(l'l) + a_{2k}(l'lJJ') a_2(l'lJJ') + a_{3k}(l'lJ') a_3(l'lJ') + a_{4k}(l'lJ') a_4(l'lJ') + a_{5k}(l'lJ'L') a_5(l'lJ'L') + a_{6k}(l'lJJ') a_6(l'lJJ') + a_{7k}(l'lJJ'L) \cdot a_7(l'lJJ'L) + a_{8k}(l'lJJ') a_8(l'lJJ') + a_{9k}(l'lJJ'LL') \cdot a_9(l'lJJ'LL') + a_{10}(l'lJJ'L') a_{10}(l'lJJ'L') \},$$

$$a_{1k}(l'l) = (l'l 00 | k 0) W(l'l j_2 j_2; k j_1),$$

$$a_{2k}(l'lJJ') = [(l'l 00 | J 0) (l'l 00 | J' 0) (JJ' 00 | k 0) - 2(-1)^{l+l'+k} (l'l 0 - 1 | J - 1) \cdot (l'l 0 - 1 | J' - 1) (JJ' 1 - 1 | k 0)] W(JJ' j_2 j_2; k j_1),$$

$$a_{3k}(l'lJ') = (l'l 00 | J' 0) (l'l 00 | k 0) W(l'l j_2 j_2; k j_1),$$

$$a_{4k}(l'lJ') = [l'] (-1)^{l'} (l'l 00 | J' 0)^2 (l'l 00 | k 0) W(l'l j_2 j_2; k j_1),$$

$$a_{5k}(l'lJ'L') = [l'] (-1)^{l+l'+k+d} (l'l 00 | J' 0) [2(l'l 01 | J' 1) (J' 11 - 1 | L' 0) + (l'l 00 | J' 0) (J' 100 | L' 0)] (l'l 00 | k 0) W(l'l j_2 j_2; k j_1),$$



$$\alpha_{6k}(ll'JJ') = [l'](-1)^{l+l'+k+\Delta'}(l'100|J'0)(l'100|J'0)(l100|J0)(JJ'00|k0) + \\ + 2(l'10-1|J'-1)(l10-1|J-1)(JJ'1-1|k0)W(JJ'j_2j_2; kj_1),$$

$$\alpha_{7k}(ll'JJ'L) = (-1)^{\Delta}[l](l100|J0)\{[2(l'100|J'0)(l101|J1)(J11-1|L0) + \\ + (l100|J0)(l'100|J'0)(J100|L0)](LJ'00|k0) + \\ + 4[(l100|J0)(J10-1|L-1)(l'10-1|J'-1) + (l10-1|J-1) \cdot \\ \cdot (J1-10|L-1)(l'10-1|J'-1)](LJ'1-1|k0)\}(-1)^{l+l'+k+1} \cdot \\ \cdot W(LJ'1-1|kj_1),$$

$$\alpha_{8k}(ll'JJ') = (-1)^{\Delta+\Delta'+l+l'+k}[l][l'](l100|J0)(l'100|J'0)[(l100|J0) \cdot \\ \cdot (l'100|J'0)(JJ'00|k0) - 2(l10-1|J-1)(l'10-1|J'-1)(JJ'1-1|k0)] \cdot \\ \cdot W(JJ'j_2j_2; kj_1),$$

$$\alpha_{9k}(ll'JJ'LL') = (-1)^{\Delta+\Delta'+l+l'+k}[l][l'](l100|J0)(l'100|J'0)\{[4(l101|J1) \cdot \\ \cdot ((l'101|J'1)(J11-1|L0)(J'11-1|L'0) + (l'100|J'0)(J11-1|L0) \cdot \\ \cdot (J'11-1|L'0)) + (l100|J0)(l'100|J'0)(J100|L0)(J'100|L'0)](LL'00|k0) - \\ - 2[(l100|J0)(l'100|J'0)(J10-1|L-1)(J'10-1|L'-1) + \\ + (l10-1|J-1)(l'10-1|J'-1) \cdot \\ \cdot (J1-10|L-1)(J'1-10|L'-1) + 2(l100|J0)(l'10-1|J'-1) \cdot \\ \cdot (J10-1|L-1)(J'1-10|L'-1)](LL'1-1|k0)\}W(LL'j_2j_2; kj_1),$$

$$\alpha_{10k}(ll'JJ'L') = (-1)^{\Delta+\Delta'+l+l'+k+1}[l][l']\{- (l100|J0)^2 [2(l'101|J'1)(J'11-1|L'0) + \\ + (l'100|J'0)(J'100|L'0)](JL'00|k0) + \\ + 2(l100|J0)(l10-1|J-1)[(l'10-1|J'-1)(J'1-10|L'-1) + \\ + (l'100|J'0)(J'10-1|L'-1)](JL'1-1|k0)\}W(JL'j_2j_2; kj_1),$$

$$\Delta = \delta_{l,J-1}, \quad \Delta' = \delta_{l',J'-1},$$

$$[l] = \left[ \frac{2l+1}{2J+1} \right]^{1/2}; \quad [l'] = \left[ \frac{2l'+1}{2J'+1} \right]^{1/2},$$

$$a_1(ll') = C_V^2 M_{V_0}(gl)M_{V_0}(gl') + C_A^2 M_{A_R}(gl)M_{A_R}(gl') - 2C_V C_A M_{V_0}(gl)M_{A_R}(gl'),$$

$$a_2(ll'JJ') = C_V^2 M_{V_R}(glJ)M_{V_R}(gl'J') + C_A^2 M_{A_0}(glJ)M_{A_0}(gl'J') - \\ - 2C_V C_A M_{V_R}(glJ)M_{A_0}(gl'J'),$$

$$a_3(ll'J) = 2\{C_V C_A M_{V_0}(gl)M_{A_0}(gl'J') + C_V C_A M_{V_R}(gl'J')M_{A_R}(gl) - \\ - C_V^2 M_{V_0}(gl)M_{V_R}(gl'J') - C_A^2 M_{A_R}(gl)M_{A_0}(gl'J')\},$$

$$\begin{aligned}
 a_4 (ll'J) &= 2 \{ 2 C_V C_A M_{V_0}(gl) M_{A_R}(f'l'J) - C_V^2 M_{V_0}(gl) M_{V_0}(f'l'J) - \\
 &\quad - C_A^2 M_{A_R}(gl) M_{A_R}(f'l'J) \}, \\
 a_5 (ll'J'L) &= 2 \{ C_V^2 M_{V_0}(gl) M_{V_R}(f'l'J'L) + 2 C_A^2 M_{A_R}(gl) M_{A_0}(f'l'J'L) - \\
 &\quad - C_V C_A M_{V_0}(gl) M_{A_0}(f'l'J'L) - C_V C_A M_{A_R}(gl) M_{V_R}(f'l'J'L) \}, \\
 a_6 (ll'JJ') &= 2 \{ C_V^2 M_{V_0}(f'l'J) M_{V_R}(glJ) + C_A^2 M_{A_0}(glJ) M_{A_R}(f'l'J) - \\
 &\quad - C_V C_A M_{V_0}(f'l'J) M_{A_0}(glJ) - C_V C_A M_{A_R}(f'l'J) M_{V_R}(glJ) \}, \\
 a_7 (ll'JJ'L) &= - C_V^2 M_{V_R}(f'lJL) M_{V_R}(gl'J') - C_A^2 M_{A_0}(f'lJL) M_{A_0}(gl'J') + \\
 &\quad - 2C_V C_A M_{V_R}(f'lJL) M_{A_0}(gl'J'), \\
 a_8 (ll'JJ') &= C_V^2 M_{V_0}(f'lJ) M_{V_0}(f'l'J) + C_A^2 M_{A_R}(f'lJ) M_{A_R}(f'l'J) - \\
 &\quad - 2C_V C_A M_{V_0}(f'lJ) M_{A_R}(f'l'J), \\
 a_9 (ll'JJ'LL') &= C_V^2 M_{V_R}(f'lJL) M_{V_R}(f'l'J'L) + C_A^2 M_{A_0}(f'lJL) M_{A_0}(f'l'J'L) - \\
 &\quad - 2C_V C_A M_{V_R}(f'lJL) M_{A_0}(f'l'J'L), \\
 a_{10} (ll'JJ'L) &= 2 \{ C_V^2 M_{V_0}(f'lJ) M_{V_R}(f'l'J'L) + C_A^2 M_{A_R}(f'lJ) M_{A_0}(f'l'J'L) - \\
 &\quad - C_V C_A M_{V_0}(f'lJ) M_{A_0}(f'l'J'L) - C_V C_A M_{A_R}(f'lJ) M_{V_R}(f'l'J'L) \}.
 \end{aligned}$$

For the radial electron wave functions occurring in the matrix element we similarly substitute the values of  $g_k(R)$  and  $f_k(R)$  taken on the boundary of the nucleus and include them in  $M_i$ .  $g_k(R)$  is now not a common factor of  $W(\theta, P_\gamma)$ , thus it is not negligible as in the non-relativistic approximation. The usual definition for  $M_i$  is:

$$\begin{aligned}
 M_{V_0}(gl) &= \langle j_2 || l || j_1 \rangle g_k(R) \pi(l); \\
 M_{V_R}(glJ) &= \langle j_2 || lJ \varrho_1 || j_1 \rangle g_k(R) \pi(l+1), \\
 M_{A_0}(glJ) &= \langle j_2 || lJ || j_1 \rangle g_k(R) \pi(l); \\
 M_{A_R}(gl) &= \langle j_2 || l \varrho_1 || j_1 \rangle g_k(R) \pi(l+1), \\
 M_{V_0}(f'lJ) &= \langle j_2 || lJ || j_1 \rangle f_k(R) \pi(J); \\
 M_{V_R}(f'lJL) &= \langle j_2 || lJL \varrho_1 || j_1 \rangle f_k(R) \pi(J+1), \\
 M_{A_0}(f'lJL) &= \langle j_2 || lJL || j_1 \rangle f_k(R) \pi(J); \\
 M_{A_R}(f'lJ) &= \langle j_2 || lJ \varrho_1 || j_1 \rangle f_k(R) \pi(J+1).
 \end{aligned} \tag{8}$$

For allowed transitions (7) goes over into the non-relativistic limit (62,a) and (66,a) treated in paper [2], if we keep only part  $A$  and  $V$ , and further we have taken into account the substitution  $P_\nu = -1$  and the difference in sign of  $C_V$  mentioned above. In this case the terms derived from the "small" components of the electron wave function vanish identically simultaneously with the "relati-



vistic" matrix elements, as they follow parity rules similar to those of the relativistic transitions: the matrix element of order zero does not vanish, if the initial and final states have opposite parity. Thus the relativistic terms play a role only in transitions of higher order, when they modify the correlation. The dependence of the correlation on  $P_\gamma$  remains unaltered in the sense, that  $W$  is a function of  $P_\gamma$  only for odd values of  $k$ , when it is proportional to  $P_\gamma$ .

## REFERENCES

1. K. NAGY and J. ZIMÁNYI, Nucl. Phys., **9**, 329, 1958.
2. K. NAGY, Acta Phys. Hung., **10**, 199, 1959.
3. W. HEITLER, Quantum Theory of Radiation, 3rd ed. Oxford University Press, 1954.
4. H. A. BETHE and E. E. SALPETER, Handbuch der Physik XXXV p. 155, 1957.
5. J. M. BLATT and V. F. WEISSKOPF, Theoretical Nucl. Phys. John Wiley New York p. 735, 1952.
6. A. I. ALIKHANOV, High Energy Phys. Conf., Kiev, 1959.  
R. E. MARSHAK, High Energy Phys. Conf., Kiev, 1959.

УГЛОВАЯ КОРРЕЛЯЦИЯ НЕЙТРИНО И ГАММА-КВАНТА ПРИ  $K$ -ЗАХВАТЕ II

К. НАДЬ

## Резюме

Применяя точные электронные волновые функции  $K$ -оболочки Дирака, определяется угловая корреляция между нейтрино и гамма-квантом, следующими за  $K$ -захватом. Для  $\beta$ -взаимодействия применяется комбинация  $V-A$ ; нейтрино рассматривается как частица, продольно поляризованная в обратную сторону.

# ON THE BETHE—SALPETER METHOD IN THE THIRRING MODEL

By

K. LADÁNYI

RESEARCH GROUP FOR THEORETICAL PHYSICS OF THE HUNGARIAN ACADEMY OF SCIENCES, BUDAPEST

(Presented by A. Kónya. — Received 30. III. 1960)

The BETHE—SALPETER equation of the time-ordered two-particle amplitude in the THIRRING model is solved in ladder approximation. It is shown that the correct antisymmetrical solution appreciably differs from the amplitude derived by SCARF.

## Introduction

One of the most important problems of the field theories is the convergence of the usual methods of approximation. It may be of interest to try these methods in the case of comparatively simple models, which can be solved exactly; in this case namely the approximate solutions can be compared with the exact results. For this purpose SCARF [1] investigated THIRRING's two-dimensional covariant model [2—5] and compared the solutions of the BETHE—SALPETER equation of the time-ordered two-particle amplitude in ladder approximation with the exact amplitudes calculated by GLASER's method [3]. In the following the calculations will be repeated and it will be shown that the correct antisymmetrical solution appreciably differs from the result derived by SCARF.

## Solution of the B. S. equation

The BETHE—SALPETER equation of the time-ordered two-particle amplitude can be determined on the basis of the equation of motion of the field operators  $\psi(x)$ :

$$-i\gamma^\mu \partial_\mu \psi + 2g(\bar{\psi}\psi) \psi = 0, \quad (1)$$

where

$$\{\gamma^\mu, \gamma^\nu\} = -2g^{\mu\nu}, \quad g^{11} = -g^{00} = 1, \quad g^{12} = g^{21} = 0 \quad (2)$$

and

$$\bar{\psi} = \psi^* \gamma^0.$$

It is suitable to choose the following representation of the Dirac matrices:

$$\gamma^0 = \sigma_2, \quad \gamma^1 = i\sigma_1. \quad (3)$$



The operators  $\psi(x_a)$  ( $a$  is the spinor index) obey the equal-time commutation relations

$$\{\psi(x^0, x^1, a), \psi^*(x^0, y^1, \beta)\} = \delta_{a\beta} \delta(x^1 - y^1), \quad (4)$$

$$\{\psi(x^0, x^1, a), \psi(x^0, y^1, \beta)\} = 0. \quad (5)$$

The definition of the time-ordered two-particle amplitude is:

$$\tau(x_1 a_1, x_2 a_2) = \langle 0 | T\psi(x_1 a_1) \psi(x_2 a_2) | 2 \rangle. \quad (6)$$

This function satisfies the following system of differential equations [6]:

$$-i\gamma_{a_1 a_1'}^{\mu} \frac{\partial}{\partial x_1^{\mu}} \tau(x_1 a_1', x_2 a_2) = 2g\tau(x_1 a_1, x_2 a_2, x_1 a | x_1 a), \quad (7)$$

$$\begin{aligned} -i\gamma_{a_2 a_2'}^{\mu} \frac{\partial}{\partial x_2^{\mu}} \tau(x_1 a_1, x_2 a_2', x_1 a | x_1 a) &= 2g\tau(x_1 a_1, x_2 a_2, x_1 a, x_2 \beta | x_2 \beta, x_1 a) \\ &+ 2ig\delta_{a_2 a} \delta(x_2 - x_1) \delta(x_1 a_1, x_1 a), \end{aligned} \quad (8)$$

where, as usual,

$$\tau(x_1 a_1, x_2 a_2, \dots | y_1 \beta_1, \dots) = \langle 0 | T\psi(x_1 a_1) \psi(x_2 a_2) \dots \bar{\psi}(y_1 \beta_1) \dots | \Phi \rangle.$$

The function  $\delta$  on the right side of equation (8) results from the derivative of the factor  $\varepsilon(x_2^0 - x_1^0)$  contained in the  $T$  product and the function  $\delta(x_2^1 - x_1^1)$  in the commutator. Taking (7) and (8) into account it follows immediately that

$$\begin{aligned} \left(i\gamma_{a_1 a_1'}^{\mu} \frac{\partial}{\partial x_1^{\mu}}\right) \left(i\gamma_{a_2 a_2'}^{\nu} \frac{\partial}{\partial x_2^{\nu}}\right) \tau(x_1 a_1', x_2 a_2') &= 4g^2 \tau(x_1 a_1, x_2 a_2, x_1 a, x_2 \beta | x_2 \beta, x_1 a) \\ &+ 2ig\delta(x_2 - x_1) \tau(x_1 a_1, x_2 a_2). \end{aligned} \quad (9)$$

For the calculation of the ladder approximation it is necessary to give the free-field propagator

$$S^c(x - y) = \frac{1}{i} \langle 0 | T\bar{\varphi}(x)\varphi(y) | 0 \rangle = \frac{1}{(2\pi)^2} \int d^2 p \frac{\gamma^{\mu} P_{\mu}}{p^2 - i\varepsilon} e^{ip(x-y)}. \quad (10)$$

It can be readily seen that  $S_{11}^c = S_{22}^c = 0$ . Introducing the following substitutions:

$$u = x^0 + x^1, \quad v = x^0 - x^1, \quad (11)$$

$$p = \frac{1}{2}(p^1 - p^0), \quad q = -\frac{1}{2}(p^1 + p^0). \quad (12)$$

$S^c$  can take the following form

$$S_{12}^c(w) = \frac{i}{(2\pi)^2} \iint dp dq \frac{q}{pq + i\varepsilon} e^{ipu+iqv}, \quad (13)$$

$$S_{21}^c(w) = -\frac{i}{(2\pi)^2} \iint dp dq \frac{q}{pq + i\varepsilon} e^{ipv+iqu}, \quad (14)$$

where  $w$  denotes the variables  $u$  and  $v$ . Using the well-known relations

$$\frac{1}{x + i\varepsilon} = -i \lim_{K \rightarrow \infty} \int_0^K dk e^{ikx} = \frac{P}{x} - i\pi\delta(x),$$

a straightforward calculation yields

$$S_{12}^c(w) = -\frac{1}{2\pi i} \frac{P}{v} - \frac{1}{2} \varepsilon(u) \delta(v), \quad (15a)$$

$$S_{21}^c(w) = \frac{1}{2\pi i} \frac{P}{u} + \frac{1}{2} \varepsilon(v) \delta(u). \quad (15b)$$

Using the WICK theorem [7] the first term on the right side of equation (8) can be expressed in terms of the matrix elements of normal products ( $\varphi$  functions). In the following the  $\varphi$  functions having more than two variables will be neglected in ladder approximation and the free-field propagator (15) will be used. Introducing the new variables defined in (11) and taking into consideration that

$$S_{\alpha\beta}^c(w_1 - w_2) = -S_{\alpha\beta}^c(w_2 - w_1),$$

equation (9) becomes

$$\frac{\partial^2 \tau(w_1 1, w_2 2)}{\partial u_1 \partial v_1} = g^2 S_{12}^c(w_1 - w_2) S_{21}^c(w_1 - w_2) \tau(w_1 2, w_2 1) + ig\delta(w_1 - w_2) \tau(w_1 2, w_2 1). \quad (16)$$

Considering that the  $\tau$ -functions must be antisymmetrical

$$\tau(w_1 2, w_2 1) = -\tau(w_2 1, w_1 2). \quad (17)$$

In the center-of-mass system

$$\tau(w_1 \alpha, w_2 \beta) = \chi_{\alpha\beta}(w) e^{-i \frac{E}{4} (u_1 + u_2 + v_1 + v_2)} \quad (18)$$



with

$$w = w_1 - w_2.$$

Substituting (18) into the equations (16) and (17) we obtain:

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \chi_{12}(w)}{\partial u \partial v} + i \frac{E}{4} \left( \frac{\partial \chi_{12}(w)}{\partial u} - \frac{\partial \chi_{12}(w)}{\partial v} \right) + \left( \frac{E}{4} \right)^2 \chi_{12}(w) \\ = g^2 S_{12}^c(w) S_{21}^c(w) \chi_{12}(-w) + ig \delta(w) \chi_{12}(-w), \end{aligned} \quad (19)$$

where

$$g^2 S_{12}^c(w) S_{21}^c(w) = \left( \frac{g}{2\pi} \right)^2 \left[ \frac{P}{u} \frac{P}{v} + i\pi \frac{P}{u} \varepsilon(u) \delta(v) + i\pi \frac{P}{v} \varepsilon(v) \delta(u) \right]. \quad (20)$$

At first we solve the following differential equation:

$$\frac{\partial^2 \chi_{12}^{(0)}(w)}{\partial u \partial v} + k \left( \frac{\partial \chi_{12}^{(0)}(w)}{\partial u} - \frac{\partial \chi_{12}^{(0)}(w)}{\partial v} \right) - k^2 \chi_{12}^{(0)}(w) = \left( \frac{g}{2\pi} \right)^2 \frac{P}{u} \frac{P}{v} \chi_{12}^{(0)}(-w), \quad (21)$$

where  $k = iE/4$ . By introducing the substitution  $\chi_{12}^{(0)}(w) = A(u)B(v)$  equation (21) can be factored

$$\left( \frac{d}{du} - k \right) A(u) = a' \frac{P}{u} A(-u), \quad (22)$$

$$\left( \frac{d}{dv} + k \right) B(v) = b' \frac{P}{v} B(-v), \quad (23)$$

where

$$a'b' = \left( \frac{g}{2\pi} \right)^2. \quad (24)$$

The solutions  $A$  and  $B$  can be constructed by taking into account the following identity:

$$\left( \frac{d}{du} - k \right) e^{ku} u^a F(a; 1 + 2a; -2ku) = \frac{a}{u} e^{-ku} u^a F(a; 1 + 2a; 2ku), \quad (25)$$

where  $F$  is a confluent hypergeometric function. Let us take the solution of equation (22) in the following form:

$$A(u) = y(a, u) e^{ku} F(a; 1 + 2a; -2ku), \quad a' = (-1)^{-a} a. \quad (26)$$

For the function  $y(a, u)$  the following equation is obtained:

$$\frac{dy(a, u)}{du} = a' \frac{P}{u} y(a, -u), \quad y(a, u) = u^a \quad \text{if} \quad u \rightarrow \infty. \quad (27)$$

It is well known that  $P/u$  can be given as the limiting value of a continuous function

$$\frac{P}{u} = \lim_{K \rightarrow \infty} \frac{1 - \cos Ku}{u}. \quad (28)$$

Using (28) the solution of equation (27) is

$$y(a, u) = \lim_{K \rightarrow \infty} e^{-\alpha Ci(Ku)} u^a, \quad Ci(x) = - \int_x^{\infty} \frac{\cos t}{t} dt. \quad (29)$$

In a quite similar manner we obtain

$$B(v) = y(b, v) e^{-k v} F(b; 1 + 2b; 2kv), \quad b' = (-1)^{-b} b. \quad (30)$$

From equation (24) it follows immediately that  $a$  and  $b$  satisfy the following conditions:

$$a_2 = \left( \frac{g}{2\pi} \right)^2 (-1)^{a_1}, \quad (31)$$

with

$$a_2 = ab, \quad a_1 = a + b. \quad (32)$$

Thus the solutions  $a$  and  $b$  belonging to an arbitrary complex number  $a_1$  can be readily obtained.

In the following let us investigate the product  $\delta(u)y(a, u)$  on the right side of equation (19). It can be proved in a simple way that

$$\lim_{K \rightarrow \infty} \int_{-\infty}^{\infty} du \delta(u; K) y(a, u; K) \begin{cases} = 0 & \text{if } \operatorname{Re} a > 0, \\ \neq 0 & \text{if } \operatorname{Re} a = 0, \\ = \infty & \text{if } \operatorname{Re} a < 0, \end{cases}$$

where

$$\delta(u; K) = \frac{1}{\pi} \frac{\sin Ku}{u}, \quad y(a, u; K) = e^{-Ci(Ku)} u^a.$$

According to the above the solutions  $\chi_{12}^{(0)}(w)$  satisfy equation (19) too, if

$$\operatorname{Re} a > 0, \quad \operatorname{Re} b > 0.$$



As compared to the amplitude derived by SCARF the main differences are: *a*) the solution is completely antisymmetrical. *b*) it vanishes on the relative light cone, *c*) there exist "almost periodic" solutions in the coupling constant *g*. Problems relating to the elimination of the spurious extra solutions of equation (19) will be treated in a subsequent paper.

## REFERENCES

1. F. L. SCARF, *Phys. Rev.*, **111**, 1433, 1958.
2. W. E. THIRRING, *Ann. Phys.*, **9**, 91, 1958.
3. V. GLASER, *Nuovo Cim.*, **9**, 990, 1958.
4. W. E. THIRRING, *Nuovo Cim.*, **9**, 1107, 1958.
5. T. PRADHAN, *Nuclear Phys.*, **9**, 124, 1958/59.
6. Cf. e. g. T. MATTHEWS and A. SALAM, *Proc. Roy. Soc. (London)* **A221**, 128, 1954; W. ZIMMERMANN, *Suppl. Nuovo Cim.*, **11**, 43, 1954.
7. C. G. WICK, *Phys. Rev.*, **80**, 268, 1950.

## О МЕТОДЕ БЕТЕ—САЛПЕТЕРА В МОДЕЛИ ТИРРИНГА

К. ЛАДАНЫИ

## Резюме

В работе дается временное решение уравнения Бете—Салпетера для амплитуды двух частиц при применении модели Тирринга в последовательном приближении. Показывается, что корректное антисимметричное решение значительно отличается от амплитуды, определенной Скарфом.

# ИССЛЕДОВАНИЯ ГЕТЕРОГЕННОЙ ПОДКРИТИЧЕСКОЙ СИСТЕМЫ SR-1

Л. ПАЛ, Ф. САБО, З. ДЫМЕШИ, Л. БАТА и Л. ТУРИ

ЦЕНТРАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ИНСТИТУТ ФИЗИКИ АН ВЕНГРИИ, БУДАПЕШТ

(Представлено Л. Яноши. — Поступило: 7. VII. 1960.)

В работе излагаются результаты измерений, проведенных на подкритической гетерогенной системе SR—1, состоящей из цилиндрических тепловыделяющих элементов, содержащих уран, обогащенный до 10% изотопом U—235 и дистиллированной воды. Были определены критическая масса и влияние местного искажения решетки активной зоны на критическую массу. Было определено распределение термических и резонансных нейтронов в активной зоне и отражателе, а также между двумя соседними тепловыделяющими элементами. Было определено закон асимптотического распределения термических нейтронов на сравнительно небольшом расстоянии от активной зоны.

## Введение

Изучение нейтронно-размножающих систем из водородосодержащих замедлителей и обогащенного урана имеет большое значение для развития реакторов, предназначенных для производства промышленного тепла.

В настоящей работе излагаются экспериментальные результаты, полученные на гетерогенной подкритической системе SR—1.

При осуществлении этого эксперимента главное внимание уделялось следующим вопросам:

1. Определение критической массы в данной системе и выяснение влияния локального искажения решетки на критическую массу.
2. Определение радиального и аксиального макрораспределения термического и резонансного нейтронного потока, а также его микро-распределения вблизи тепловыделяющего элемента.

Описание конструкции подкритической системы SR—1.

Прежде всего дадим описание конструкции подкритической системы.

Центральная часть конструкции системы SR—1 выполнена в виде заполненного дистиллированной водой стального цилиндрического бака с внутренним диаметром 920 мм и с высотой 1745 мм. Толщина стены бака была 3 мм. На внутренней поверхности бака был нанесен противокоррозийный слой из специального лака типа «Резистан-Р».

В верхней и нижней частях активной зоны кассеты фиксируется при помощи направляющих решеток, закрепленных на верхней крышке бака. Направляющие решетки с шагом 68 мм были изготовлены из алюминиевого



листа (99,99% Al) с толщиной 1 мм. Расстояние между плоскостями нижней и верхней решеток было 525 мм. Над нижней направляющей решеткой на расстоянии 358 мм от дна бака находился перфорированный плоской держатель из алюминиевого листа с толщиной 6 мм. Этот держатель фиксировал вертикальное положение кассет с тепловыделяющими элементами. Через

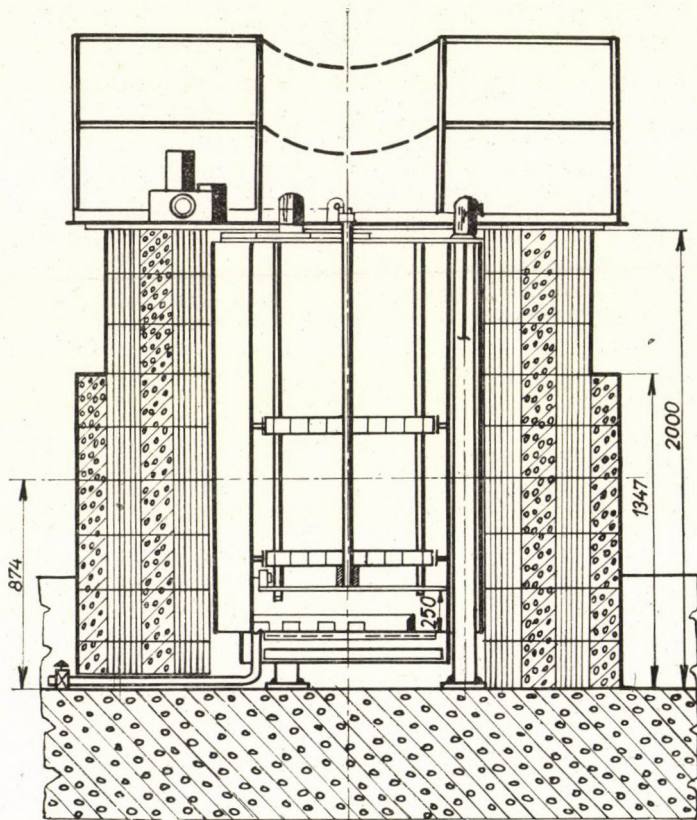


Рис. 1

Вертикальный разрез подкритической системы

центральную ячейку направляющей решетки проходили две алюминиевые трубы с внутренним диаметром 17 мм для ввода нейтронного источника и стержня аварийной защиты. Стержень аварийной защиты был изготовлен из стали, покрытой двухмиллиметровым слоем кадмия. Диаметр и длина стержня были 17,8 мм и 550 мм. На рис. 2. представлен горизонтальный разрез активной зоны.

При такой конструкции активной зоны имелась возможность создать самые разные конфигурации из кассет, содержащих 16 тепловыделяющих элементов типа ЭЖ—10. Тепловыделяющие элементы, имеющие форму цилин-

дров с наружным диаметром 10 мм и с активной высотой 500 мм, в нормальных кассетах (рис. 3а) образуют квадратную решетку с шагом 18 мм.

Расположение тепловыделяющих элементов в искаженных кассетах представлено на рис. 3б.

Каждый элемент имеет сердечник из делящегося материала с диаметром 6 мм, содержащий уран, с плотностью 5,66 г/см<sup>3</sup>, обогащенный изотопом U—235 до 10%.

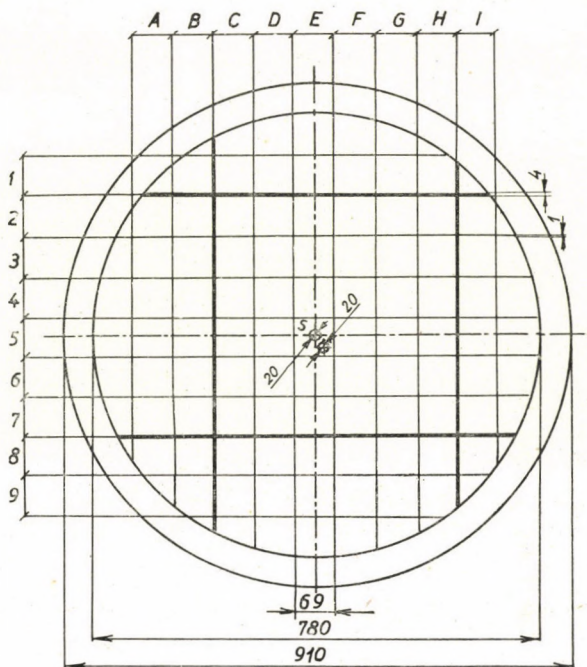


Рис. 2

Горизонтальный разрез активной зоны

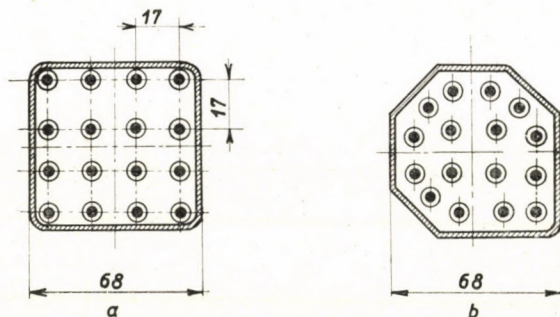


Рис. 3

- а) Схема нормальной кассеты  
б) Схема искаженной кассеты



Оболочки тепловыделяющих элементов изготовлены из алюминиевого сплава.

Под баком был расположен электрический нагреватель, снабженный автоматическим регулятором температуры. Равномерное распределение тем-

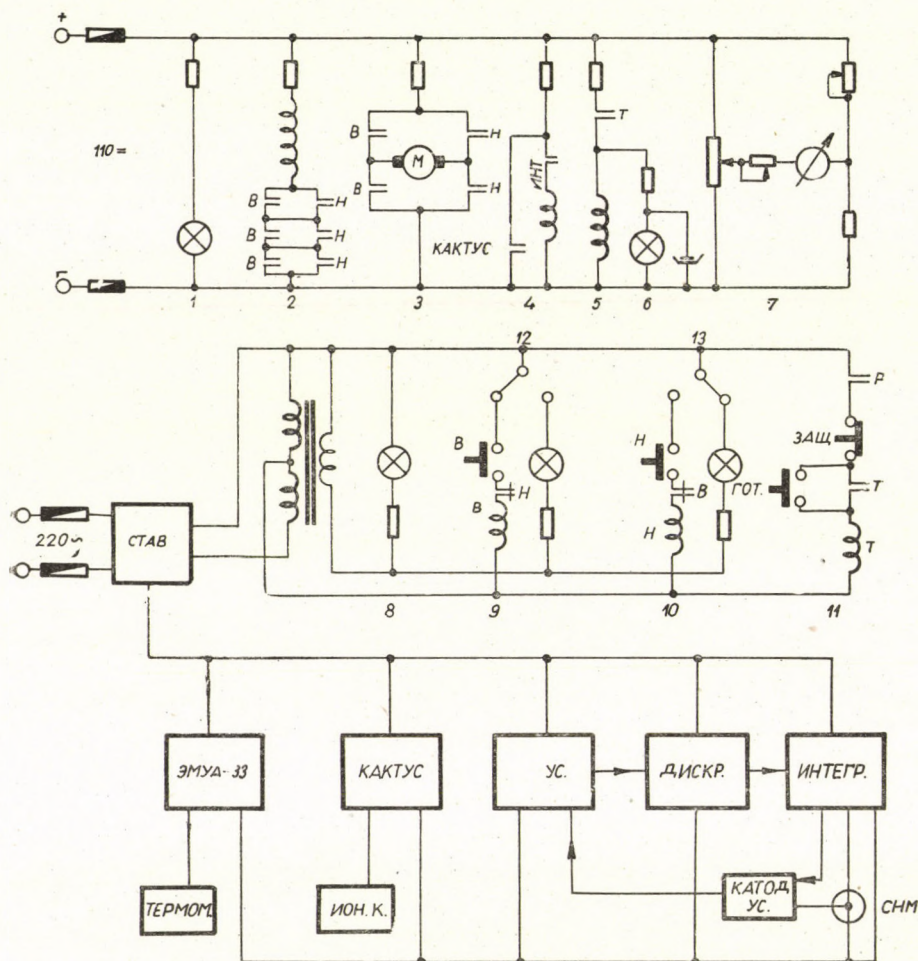


Рис. 4

Схема управления подкритической системы SR-1.

1. сигнализация, 2. возбуждение, 3. якорь, 4. реле, 5. магнит, 6. сигн. «ГОТОВ», 7. датчик полож. 8. сигнал. 9. «ВВЕРХ», 10. «ВНИЗ», 11. подготовка, 12 и 13. перекл. верхнего и нижнего пол

пературы во всем объеме водяного бака было обеспечено сильным перемешиванием воды. Температура воды измерялась с прибором типа ЭМУА—33. Сухой остаток воды при наполнении был 1 мг/л, а после двухмесячной работы он повысился до 6 мг/л.



Вокруг бака были построены 60 сантиметровые защитные стены с высотой 2000 мм из блоков тяжелого бетона (3,2 т/м<sup>3</sup>). Крепление защитных стен и всей системы было выполнено из стальной конструкции.

Подкритическая система SR—1 была оборудована аварийной защитой типа СП—41, которая срабатывала при прекращении тока в удерживающем электромагните. Ток электромагнита прерывается:

а) если поток тепловых нейтронов в баке превосходит заранее заданный уровень на 20%;

б) если интенсивность гамма-излучения в зале достигает заранее заданной величины;

в) если появляется любая неисправность в системе аварийной защиты.

Кроме сбрасывания стержня в аварийных случаях имелась возможность для непрерывного перемещения стержня при помощи реверсивного двигателя.

Для измерения нейтронного потока был использован борный нейтронный счетчик типа СНМ—5А, а для измерения гамма-излучения — ионизационная камера типа «КАКТУС».

Управление подкритической системой SR—1 осуществлялось с небольшого пульта, на котором были собраны основные измерительные блоки. (На рис. 4 представлена схема управления.)

### Определение критической массы

Для определения критической массы при температуре 20°C кассеты, содержащие 16 тепловыделяющих элементов, вкладывались по определенной программе в направляющую решетку. Po-Be нейтронный источник с активностью 5.10<sup>6</sup> н/сек был помещен в центре активной зоны при помощи трубы S, проходящей через ячейку E—5. Борные счетчики были расположены в ячейках C—7 и G—3, на высоте средней горизонтальной плоскости активной зоны.

Прежде всего определялся поток нейтронов нейтронного источника в ячейках C—7 и G—3 до загрузки кассет. После загрузки каждой кассеты в этих же ячейках измерялся поток нейтронов.

Пусть обозначим через

$$A_i(R) = \frac{\Phi_i(R)}{\Phi_0(R)} = \frac{N_i(R)}{N_0(R)}$$

фактор усиления в ячейке R (R = C—3, G—7) после загрузки i-той кассеты, где N<sub>i</sub>(R) — число импульсов борного счетчика в одну секунду в ячейке R. На рис. 5а. представлена зависимость A<sub>4</sub>(R)/A<sub>i</sub>(R) в ячейках R = C—7 (точки обозначены кружками) и R = G—3 (точки обозначены треугольниками) от числа загруженных кассет.



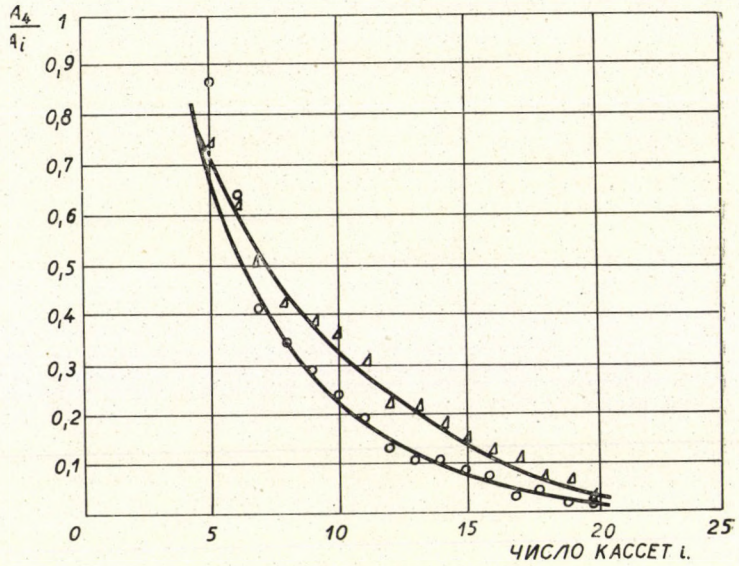


Рис. 5а  
Зависимость  $A_4(R)/A_1(R)$  от числа загрузки кассет

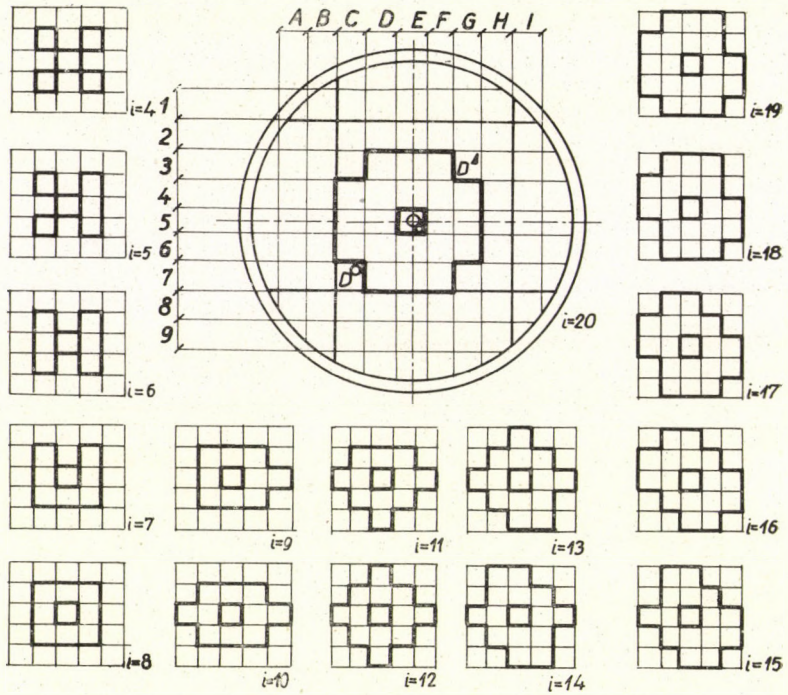


Рис. 5б  
Конфигурации загруженных кассет в зависимости от  $i$



Естественно, что  $A_i(R)$  зависит не только от числа кассет и положения нейтронного детектора, но и от конфигурации загруженных кассет. Поэтому у каждого значения  $i$  на рис. 5б. приведена конфигурация загруженных кассет и отмечена кассета, загруженная последней.

Приближаясь к критическому состоянию, желательно было бы вкладывать тепловыделяющие элементы в активную зону не в виде кассет, а каждый в отдельности. В этом случае можно было бы определить последний участок кривой  $A_4(R)/A_i(R)$  более точно. К сожалению, конструкция зоны не позволила провести такой порядок загрузки.

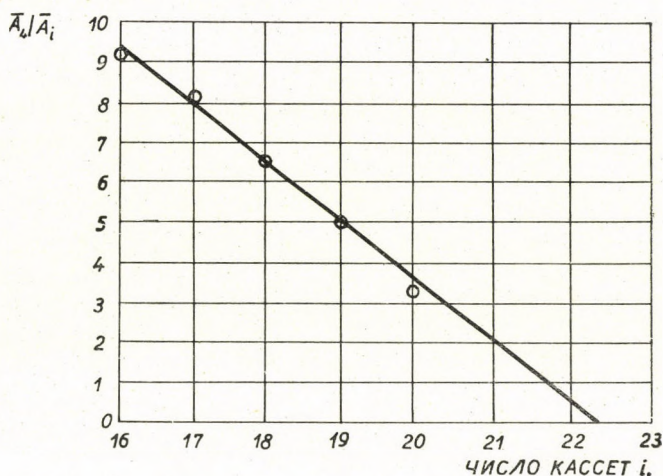


Рис. 6  
Зависимость  $A_4/A_i$  от числа загруженных кассет

Для более надежного определения критической загрузки из четырех факторов локального усиления, измеренных в симметрично расположенных ячейках ( $R=С-4$ ,  $С-7$ ,  $G-3$ ,  $G-7$ ) был вычислен усредненный фактор усиления  $\bar{A}_i = \sum_R w_i(R) A_i(R)$ , где  $w_i(R)$  является статистическим весом  $A_i(R)$ .

На рис. 6. видна зависимость  $\bar{A}_4/\bar{A}_i$  от числа кассет. Критическое состояние достигается при  $22 < i < 23$ . Это означает, что критическая загрузка  $m_k$  по изотопу  $U-235$  находится в интервале  $2816 \text{ г} < m_k < 2944 \text{ г}$ .

Полученная критическая загрузка в системе SR-1 не соответствует критической загрузке реактора ВВРС-Н. Критическая загрузка реактора ВВРС-Н была точно определена; она составляет по изотопу  $U-235$  3059 г. Возникает вопрос, чем объясняется наблюдаемая разница  $115 \text{ г} < \Delta m_k < 243 \text{ г}$ .

Если сравнить активную зону реактора ВВРС-Н с активной зоной системы SR-1, то оказывается, что в активной зоне ВВРС-Н имеются кас-



сету с искаженной решеткой. Между этими кассетами образуется водяной зазор. Расположение искаженных кассет в активной зоне реактора ВВРС—Н представлено на рис. 7.

С помощью одnogруппового метода возмущения было определено изменение реактивности  $\delta k_{eff}/k_{eff}$  вызванное этими искажениями решетки.

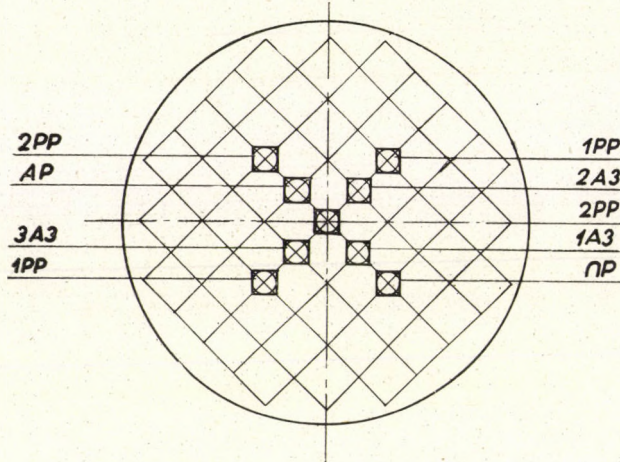


Рис. 7

Расположение искаженных кассет в активной зоне реактора ВВРС—Н

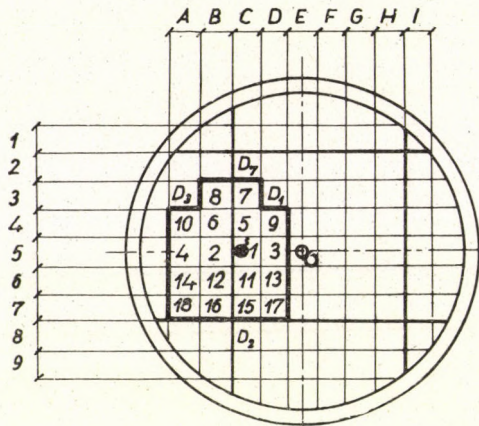


Рис. 8

Схема загрузки нормальных кассет

По данным измерений на ВВРС—Н был известен грамм-эквивалент изотопа  $U-235$ , соответствующий однопроцентному изменению реактивности. Таким образом, мы смогли оценить разницу в критической массе между неискаженной и искаженной решетками.

Полученная разница хорошо согласуется с разницей, определенной экспериментальным путем.

Для более детального исследования влияния искаженных кассет проводился целый ряд измерений на SR—1. На рис. 8. представлена схема

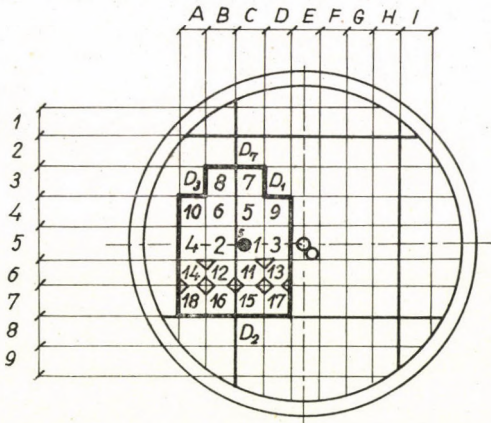


Рис. 9  
Схема загрузки искаженных кассет

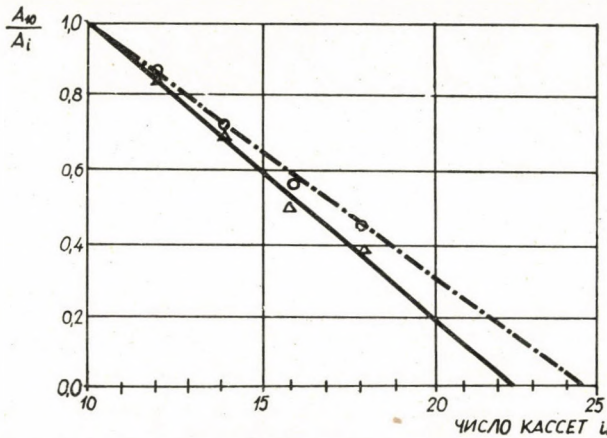


Рис. 10  
Влияние искаженной решетки на критическую массу

загрузки кассет в активную зону SR—1. В первом варианте эксперимента были загружены 18 нормальных кассет по данной программе и определялась зависимость величины  $A_{10}(R)/A_i(R)$  от числа кассет в ячейках  $R = D-3$ ,  $C-8$ ,  $A-3$ .

Во втором варианте были загружены искаженные кассеты; они образовали деформированную решетку. Эта решетка схематически изображена



на рис. 9. Снова определялась зависимость величины  $A_{10}(R)/A_i(R)$  от числа кассет в ячейках  $R = D-3$ ,  $C-8$ ,  $A-3$ .

На рис. 10. представлены результаты измерений в ячейке  $R = D-3$ . Видно, что в случае искаженной решетки критическая масса больше, чем при нормальной.

Разница составляет приблизительно 150 г U—235, это согласуется с расчетным значением изменения критической массы. Для более точного расчета разрабатывается двухгрупповый метод возмущения.

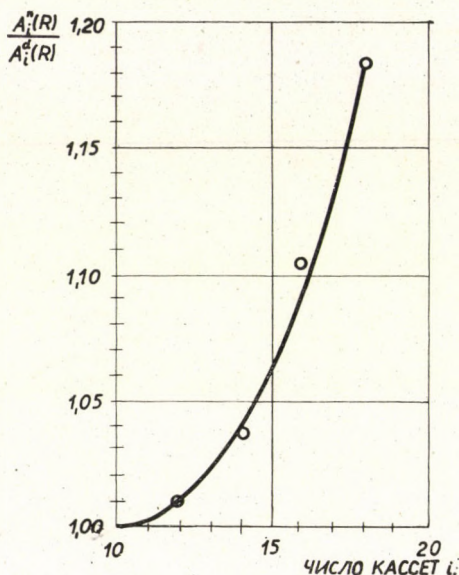


Рис. 11  
Зависимость  $A_i^n(R)/A_i^d(R)$  от числа кассет

Для наглядности на рис. 11. представлена зависимость кривой  $A_i^n(R)/A_i^d(R)$  от числа кассет. ( $A_i^n(R)$  — локальный фактор усиления в случае нормальной решетки, а  $A_i^d(R)$  — та же самая величина в случае искаженной решетки.)

### Распределение потока нейтронов в системе SR-1

Распределение нейтронного потока по высоте и радиусу активной зоны измерялось методом активации индикаторов. В качестве индикатора использовался металлический родий в виде фольги с толщиной 72 мг/см<sup>2</sup>. Активность фольги измерялась торцевым счетчиком типа СИ—2В в свинцовом домике типа «ГАММА—1891».

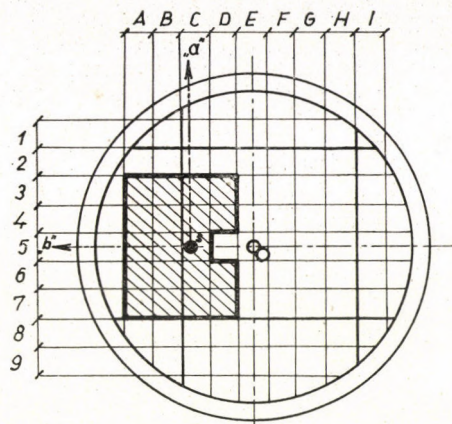


Рис. 12  
Конфигурация активной зоны

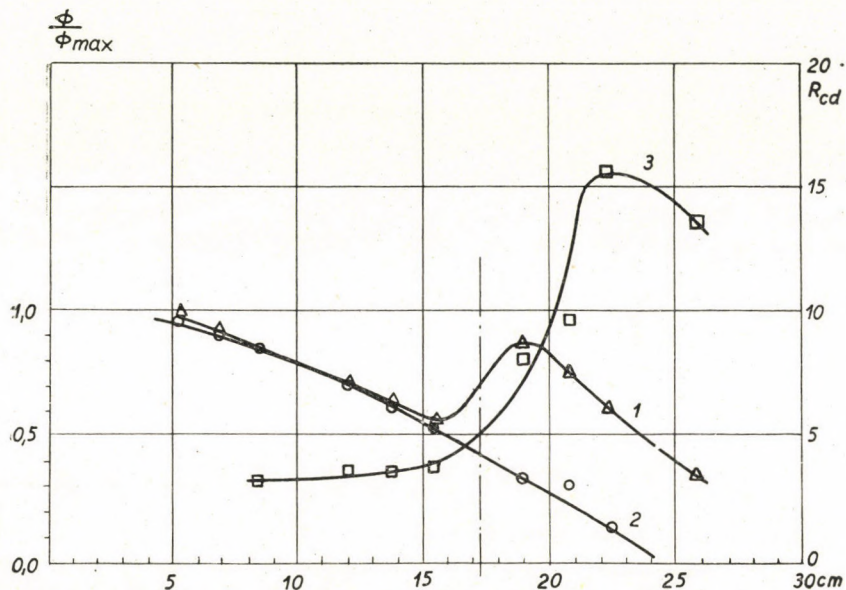


Рис. 13

Распределение потока термических (1) и резонансных (2) нейтронов по направлению «а», и зависимость кадмиевого отношения (3) от расстояния

Для регистрации импульсов счетчика было использовано пересчетное устройство типа S-||-R, дающее возможность измерять время, необходимое для накопления заранее установленного количества импульсов. Для разделения термического и резонансного потока нейтронов родиевая фольга облучалась в чехле из кадмия и без него.



На рис. 12. представлена конфигурация активной зоны, состоящей из 19 кассет. На этом же рисунке показаны направления «а» и «в», вдоль которых производились измерения. Из кассеты загруженной в ячейке  $R = C-5$  были вынуты два тепловыделяющих элемента и на их место помещался нейтронный источник.

На рис. 13. представлены результаты измерений по направлению «а». На расстоянии 19 см от нейтронного источника (в водяном отражателе) термический поток нейтронов имеет ярко выраженный максимум.

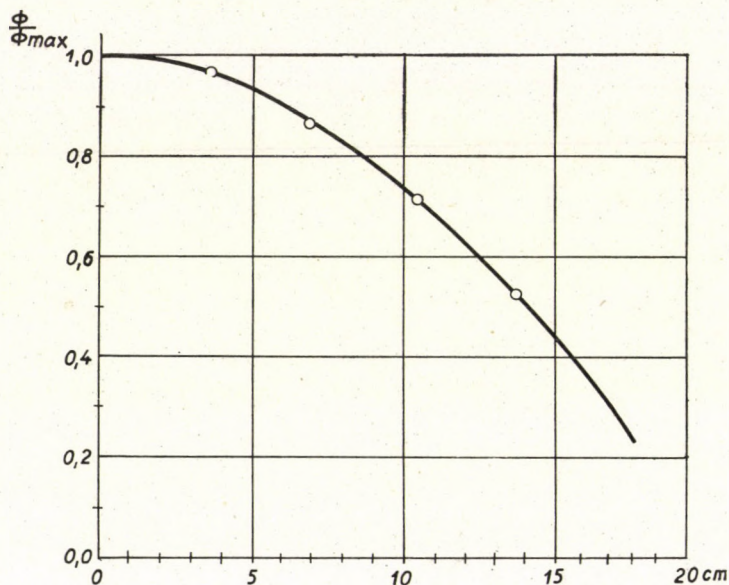


Рис. 14

Распределение резонансных нейтронов по направлению «в»

Распределение термического потока нейтронов в средней части активной зоны хорошо аппроксимируется функцией  $\cos \frac{\pi}{H_a + 2\delta} r$ , где  $H_a$  — ширина зоны по направлению «а»,  $\delta$  — эффективная добавка. Величина  $a = \frac{\pi}{H_a + 2\delta}$  определялась по методу наименьших квадратов. При этом не учитывались точки, находящиеся вблизи от внешнего нейтронного источника, так как здесь заметная часть потока термических нейтронов образовалась из быстрых нейтронов внешнего нейтронного потока. Для  $a$  было найдено следующее значение:

$$a = 0,064$$

Для эффективной добавки (при  $H_a = 350$  мм) получается  $\delta = 70$  мм.



На рис. 14. представлено распределение резонансных нейтронов по направлению «В».

Представляет также интерес определение «микрораспределения» термического и резонансного потока нейтронов между двумя соседними тепловыделяющими элементами. При помощи весьма тонкого родиевого зонда были сняты эти кривые, которые видны на рис. 15. Наблюдается характерная зависимость термического потока нейтронов вблизи тепловыделяющего элемента.

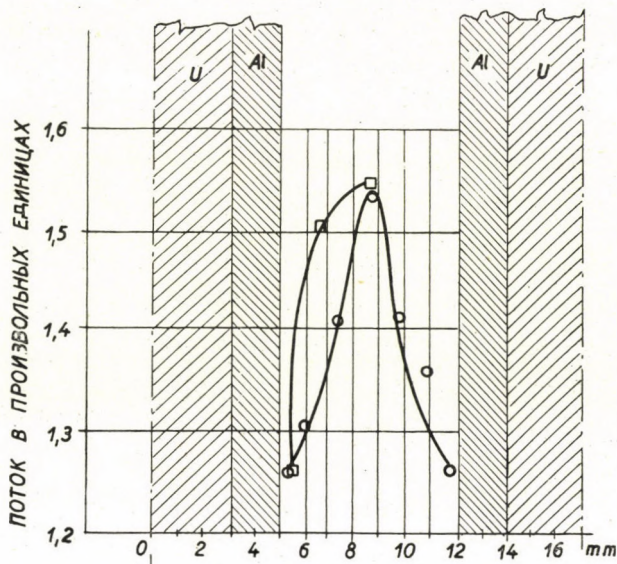


Рис. 15

Распределение нейтронного потока между двумя соседними тепловыделяющими элементами  
(термический поток ○, резонансный поток □)

В связи с проблемой определения фактора усиления подкритической системы измерялось асимптотическое распределение термического нейтронного потока на сравнительно небольшом расстоянии от активной зоны.

Длина релаксации для нейтронов деления в воде больше длины диффузии термических нейтронов; поэтому можно ожидать, что асимптотическое распределение потока тепловых нейтронов описывается формулой [1]

$$\Phi_s \sim Kr^{-\alpha} e^{-\frac{r}{\lambda}},$$

где  $\lambda$  — длина релаксации,  $\alpha$  — положительное число, зависящее от геометрии нейтронного источника,  $K$  — фактор пропорциональности.

На рис. 16. изображена схема загрузки кассет и указано направление измерения.



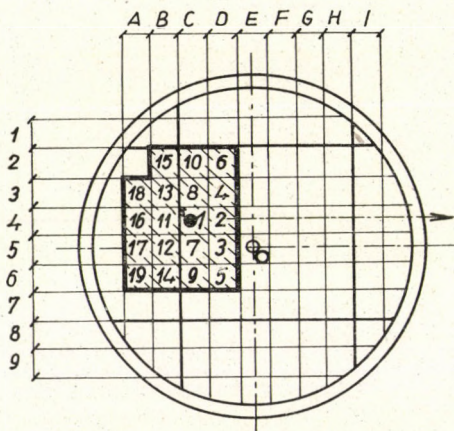


Рис. 16

Конфигурация активной зоны для измерения асимптотического распределения потока термических нейтронов

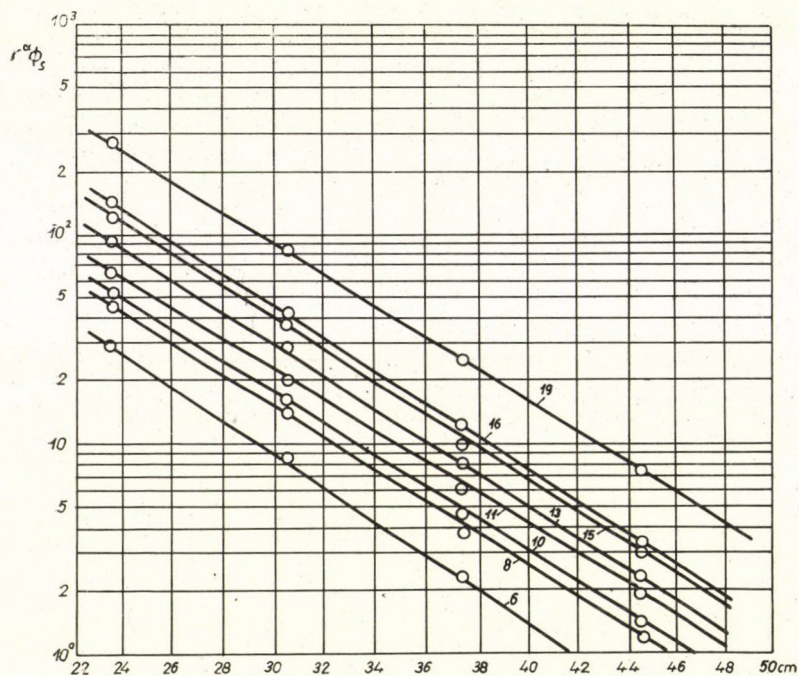


Рис. 17

Асимптотическое распределение термических нейтронов на сравнительно небольшом расстоянии от активной зоны при разных конфигурациях загруженных кассет



Методом наименьших квадратов из данных измерений были определены параметры  $\lambda$  и  $\alpha$ . Оказалось, что эти параметры не чувствительны к детальной конфигурации нагруженных кассет. Были получены следующие значения для параметров:

$$\lambda = 5,72 \text{ см}, \alpha = 0,9.$$

На рис. 17. видны кривые  $\ln(r^a \Phi_s)$ , снятые при разных конфигурациях нагруженных кассет.

Для измерения абсолютного значения нейтронного потока был использован метод  $\beta - \gamma$  совпадений [2]. В ячейке  $R = C-4$  облучалась индиевая фольга, из активности которой определялся суммарный поток резонансных и тепловых нейтронов. Для градуировки индиевая фольга активировалась в реакторе ВВРС—н интенсивным потоком нейтронов, абсолютное значение которого определялось при помощи золотой фольги. Было найдено следующее значение суммарного потока:  $\Phi = 6,2 \cdot 10^4$  н/см<sup>2</sup>сек.

### Выводы

Суммируя результаты измерений на подкритической системе SR—1, можем сделать следующие выводы:

1. Было определено влияние местного искажения решетки активной зоны на критическую массу.
2. Было определено распределение термических и резонансных нейтронов в активной зоне и отражателе, а также между двумя соседними тепло-выделяющими элементами.
3. Было определено закон асимптотического распределения термических нейтронов на сравнительно небольшом расстоянии от активной зоны.

### ЛИТЕРАТУРА

1. A. ÁDÁM and G. KOSÁLY, KFKI Reports, **6**, 3, 1958.
2. A. ÁDÁM and L. LOVAS, KFKI Reports, **5**, 521, 1957.

### INVESTIGATION OF THE SR—1 HETEROGENEOUS SUBCRITICAL ASSEMBLY

By

L. PÁL, F. SZABÓ, Z. GYIMESI, L. BATA and L. TURI

### Abstract

The results of experiments carried out on the SR-1 heterogeneous subcritical assembly consisting of cylindrical fuel elements (enriched in U-235 to 10%) and distilled water are reported. The critical mass and the effect of local distortions in the core on criticality are determined. The distributions of thermal as well as resonance neutrons in the core, in the reflector and between two adjacent fuel elements are measured. The asymptotical distribution of the thermal neutrons in the reflector is studied.





# DIFFUSION EFFECTS IN ELECTRON BOMBARDMENT INDUCED PROCESSES I. CATHODOLUMINESCENCE

By

GY. GERGELY

RESEARCH INSTITUTE FOR TELECOMMUNICATION, BUDAPEST

(Presented by Z. Gyulai. — Received 19. VII. 1960)

An analysis of the voltage dependence of processes induced by electron bombardment is given taking into consideration the surface recombination and diffusion. The diffusion equation of DEVORE is combined with KOLLER—ALDEN's, YOUNG's and FELDMAN's laws relating to the dissipation of beam power and penetration of incident electrons.

The cathodoluminescence is analysed on the basis of the SCHÖN—KLASENS model. For  $1-15 \text{ kV} \times 1 \mu\text{A}/\text{cm}^2$  excitation density the luminescence processes can be characterized by code number 122122 of KLASENS in ZnS phosphors. The diffusion of minority carriers may be described by a linear differential equation.

A good agreement was obtained between the theoretical resp. experimental brightness versus voltage curves. By their analysis the diffusion length  $L$  and the velocity  $S$  of the surface recombination was determined. It was found that  $L = 0,05-0,2$  micron and  $S = 6 \times 10^3-10^6 \text{ cmsec}^{-1}$  for several phosphors. The lifetime and mobility of holes can be estimated in ZnS  $\tau_p = 4.4 \cdot 10^{-10}$  sec,  $\mu_p = 11 \text{ cm}^2/\text{Vsec}$ .

## Introduction

The voltage dependence of cathodoluminescence was studied in some recent papers by the author [1-3]. Plotting the cathodoluminescence brightness  $L(V)$  against the accelerating voltage  $V$  gives a curve consisting of a low voltage tail and a linear section. Fig. 1 represents a typical  $L(V)$  curve.

The intersection of the linear section of the curve with the horizontal  $V$ -axis is called the dead voltage  $V_d$  [4]. The shape of the  $L(V)$  curve is typical for various types of phosphors and scintillators, the low voltage tail and the value of  $V_d$ , however, are slightly varying for the different phosphor samples. Attempts have been made to explain the form of the  $L(V)$  curve by assuming the constancy of the intrinsic efficiency  $\eta_0$  and the existence of a dead surface layer [1-4] which determines the magnitude of  $V_d$ . As it has been shown [2-3] the dead voltage could not be suppressed either by a chemical surface treatment or by various excitation conditions.

The object of this paper is a study of the  $L(V)$  curve. A detailed description of the experiments performed was already given in papers [1-3].

## 1. Possible causes of dead layer

The removal of a  $100-2000\text{\AA}$  thick surface layer from the crystals did not reduce the dead voltage [2], proving that dead layer is not due either to



lack of luminescent centers in the neighbourhood of the crystal surface or to surface contamination, but has to be explained rather by physical processes. Three possible physical processes may be taken into consideration:

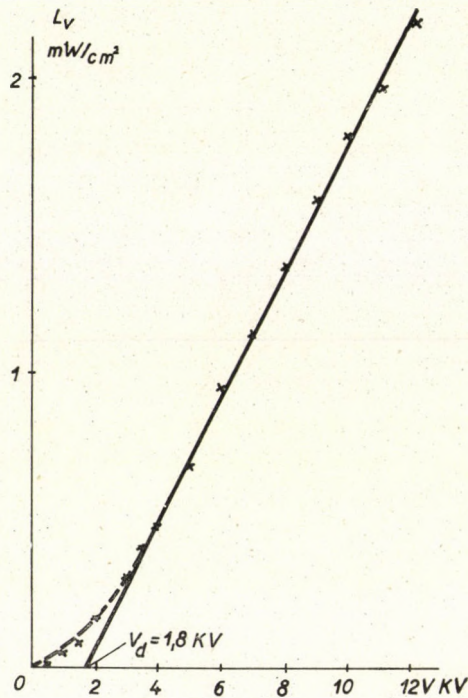


Fig. 1. The cathodoluminescence brightness versus voltage curve. The bombarding current density  $i_0 = 1 \mu\text{A}/\text{cm}^2$

1. The variation with  $V$  of the secondary emission, resp. the electron reflection coefficient.
2. The retarding field produced by the space charge of trapped electrons.
3. Surface recombination and diffusion of released internal low energy secondaries (electrons and holes).

In the following a brief survey of these possible effects will be given.

#### 1a. The effect of secondary emission and elastic reflection

As shown in [3] charging up of the phosphor layers was carefully avoided. The potential of the layer is equal to  $V$  and it is maintained by secondary electron emission [5]. Under equilibrium conditions the number of secondary electrons is equal to the number of primaries and does not vary with  $V$ . The average energy of secondaries has a magnitude of a few eV, thus the losses due to secondaries are negligible.



As for the elastic reflection of incident electrons this was neglected by BRIL [6] for the case of microcrystals. According to STERNGLASS [7] the reflection of electrons is increasing with  $V$  below 2 kV, above 2 kV it is nearly constant. The run of the reflection curve is the reverse of that of  $L(V)$ .

Accordingly, the shape of the  $L(V)$  curve cannot be explained by the action of secondary emission resp. electron reflection.

### 1b. *The effect of traps*

RUPPEL proposed to explain the  $L(V)$  curve by space charge effects [10]. The important action of space charge produced by trapped electrons in crystal counters was discussed by some authors [8, 9]. The retarding potential built up by the space charge of trapped electrons can be calculated by using LAMPERT's formula [10, 11] and it is determined by the density of traps. The low energy secondaries released by incident electrons are captured by traps. For a trap density of  $10^{15}/\text{cm}^3$ , with a dielectric constant  $\epsilon = 8$  (ZnS) and assuming that the internal secondary electrons are filling all the traps in the crystal (diameter  $10\mu$ ), the magnitude of the retarding potential should be 110 V. In KALLMANN's opinion, however, [12] the traps are filled only in small excitation channels. Thus the retarding potential is negligible in connection with  $V_d$  and its small value explains the ineffectiveness of the UV and IR irradiation [3].

### 1c. *The effect of surface recombination*

BROSER has suggested [13] that the dead layer is due to the effect of surface recombination. A theoretical analysis of the shape of the spectral distribution of the photoconductivity was given by DEVORE [14], who considered the diffusion and surface recombination of carriers. A similar analysis was given by other authors for Ge and Si semiconductors [15–17]. An analogous problem is encountered in the voltage dependence of electron bombardment induced processes (cathodoluminescence, electron bombardment conductivity, electron voltaic effect). The penetration depth of incident electrons is strongly varying with the accelerating voltage, the voltage dependence of induced processes is similar to the spectral response of photoconductivity.

In this paper the voltage dependence of processes induced by electron bombardment (cathodoluminescence in Part I, the other processes in Part II) is analysed in a manner similar to that employed by DEVORE.

## 2. Kinetic equations of processes induced by electron bombardment

The fundamental kinetic equations of photoconductivity and luminescence were summarized by SCHÖN [18]. A very practical solution was given



recently by KLASSENS [19]. SCHÖN's equations for cathode ray excitation are presented here in a somewhat modified form:

$$\frac{dn}{dt} = \underline{g(x)} - \underline{a_{CA} n A^+} - a_{CH} n (H - H^-) + \gamma_{HC} H^- - \delta np + \frac{1}{e} \operatorname{div} I_n, \quad (1)$$

$$\frac{dH^-}{dt} = \underline{a_{CH} n (H - H^-)} - \gamma_{HC} H^- - \underline{a_{HV} p H^-}, \quad (2)$$

$$\frac{dA^+}{dt} = \underline{a_{VA} p (A - A^+)} - \underline{a_{CA} n A^+} - \gamma_{VA} A^+, \quad (3)$$

$$\frac{dp}{dt} = \underline{g(x)} - \underline{a_{VA} p (A - A^+)} - a_{HV} p H^- + \gamma_{VA} A^+ - \delta np - \frac{1}{e} \operatorname{div} I_p. \quad (4)$$

SCHÖN's equations are completed by the term  $\delta np$  which cannot be neglected for high excitation densities. In equations (1)–(4) the terms relating to direct excitation of electrons from traps and activator levels, further the current drawn in traps and activator centers may be neglected. Only two sets of levels are assumed to exist in the forbidden gap: activators and traps.

The symbols used have the following definitions:

- $n$  = density of free electrons;
- $p$  = density of free holes;
- $A$  = density of activator centers;
- $A^+$  = density of ionized activator centers;
- $H$  = density of traps;
- $H^-$  = density of trapped electrons;
- $a_{CA}$  = recombination coefficient between free electrons and ionized activator centers,  $a_{CA} = 10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ sec}^{-1}$  [18, 19]
- $a_{CH}$  = resp.  $a_{VA}$  capture coefficient of traps for free electrons resp. that of activator centers for free holes.  $a_{VA} = a_{CH} = 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ sec}^{-1}$  [18, 19]
- $a_{HV}$  = recombination coefficient between trapped electrons and free holes.  $a_{HV} = 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ sec}^{-1}$ ;
- $\delta$  = recombination coefficient between free electrons and free holes.  $\delta = 10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ sec}^{-1}$  [19, 20];
- $\gamma_{HC}$  = resp.  $\gamma_{VA}$  probability per unit time for thermal ejection of a trapped electron into the conduction band resp. that of a hole in the activator level into the valence band.  $\gamma_{HC} = 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$  (for 0,8 eV) resp.  $\gamma_{VA} = 10^2 \text{ sec}^{-1}$  (for 0,53 eV);
- $g(x)$  = the density of electron hole pairs generated at a depth  $x$  in the crystal;
- $I_n$  resp.  $I_p$  = the electron resp. hole current;

$\mu_n$  resp.  $\mu_p$  = mobility of electrons resp. holes;  
 $D_n$  resp.  $D_p$  = diffusion coefficient of electrons resp. holes;  
 $\tau_n$  resp.  $\tau_p$  = the lifetime of electrons resp. holes;  
 $\varphi$  = the potential;  
 $e$  = the electronic charge;  
 $\varepsilon$  = the dielectric constant.

The four fundamental equations are to be supplemented by equations:

$$I_n = -e\mu_n n \text{grad } \varphi + eD_n \text{grad } n, \quad (5)$$

$$I_p = -e\mu_p p \text{grad } \varphi - eD_p \text{grad } p \quad (6)$$

and by the Poisson equation:

$$\Delta\varphi = -\frac{4\pi e}{\varepsilon}(p + A^+ - H^- - n). \quad (7)$$

The rigorous solution of the equations is not possible, in practice, however, several neglects may be made. In treating luminescence and photoconductivity phenomena the condition of charge neutrality is generally assumed. In consequence of the negligible effect of space charge localized in traps (section 1b)

$$\Delta\varphi = 0$$

and further, in the absence of an external electric field

$$\text{grad}\varphi = 0$$

were assumed in the analysis.

In this paper only the steady state cathodoluminescence processes will be analysed. A study of cathodoluminescence was recently undertaken by KALLMANN [12] and by POPOV [20] for very low resp. very high excitation densities. In the former case the effect of traps, in the latter one saturation occurs. In our experiments the excitation density was  $1 - 15 \text{ kV} \times 1 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ , producing  $10^{19} - 10^{21}/\text{cm}^3\text{sec}$  electron hole pairs. For high quality hex. and cub. ZnS—Ag—Cl and ZnCdS—Ag—Cl phosphors  $A = 10^{18} - 10^{19}/\text{cm}^3$  and  $H = 10^{15}/\text{cm}^3$ , [21]. Under these conditions the approximate steady state solution of the equations can be easily given by the method of KLASSENS and the processes can be characterized by code number 122122. The results of the analysis for  $A = 2,3 \cdot 10^{18}/\text{cm}^3$ , and for 1 resp. 10 kV are summarized in Table I.  $g(x)$  was calculated according to YOUNG [22] and FELDMAN [23].



Table I

Accelerating voltage kV		10	1	
Excitation density $\text{cm}^{-3}\text{sec}^{-1}$	$g$	$3 \cdot 10^{19}$	$7,6 \cdot 10^{20}$	decreasing with $V$
Occupied activator levels $\text{cm}^{-3}$	$A-A^+$	$2,3 \cdot 10^{18}$	$2,3 \cdot 10^{18}$	$= A$
Empty traps $\text{cm}^{-3}$	$H-H^-$	$2,4 \cdot 10^{10}$	$1,2 \cdot 10^{11}$	$\ll H$
Excited activator centers $\text{cm}^{-3}$	$A^+$	$5,5 \cdot 10^{15}$	$2,7 \cdot 10^{16}$	$\ll A$
Filled traps $\text{cm}^{-3}$	$H^-$	$10^{15}$	$10^{15}$	$= H$
Free electrons $\text{cm}^{-3}$	$n$	$5,5 \cdot 10^{15}$	$7,7 \cdot 10^{16}$	$> H \ll A$
Free holes $\text{cm}^{-3}$	$p$	$1,3 \cdot 10^{10}$	$3,3 \cdot 10^{11}$	$\ll n$
Photons emitted $\text{sec}^{-1}\text{cm}^{-3}$	$N$	$3 \cdot 10^{19}$	$7,6 \cdot 10^{20}$	$= g$
Radiationless transitions $\text{sec}^{-1}\text{cm}^{-3}$	$N_R$	$1,3 \cdot 10^{17}$	$3,3 \cdot 10^{18}$	$\ll N$
Recombination between free holes and centers $\text{cm}^{-3}\text{sec}^{-1}$	$\alpha_{VA}pA$	$3 \cdot 10^{19}$	$7,6 \cdot 10^{20}$	$= g$
Thermal ejection of a hole in A levels into the valance band $\text{cm}^{-3}\text{sec}^{-1}$	$\gamma_{VA}A^+$	$5,5 \cdot 10^{17}$	$2,7 \cdot 10^{18}$	$< g$
Capture of free electrons by traps $\text{cm}^{-3}\text{sec}^{-1}$	$\alpha_{CH}n(H-H^-)$	$1,3 \cdot 10^{17}$	$3,3 \cdot 10^{18}$	$= N_R$
Thermal ejection of a trapped electron into the conduction band $\text{cm}^{-3}\text{sec}^{-1}$	$\alpha_{CH}H^-$	$10^{11}$	$10^{11}$	$\ll N_R$
Recombination between free electrons and holes $\text{cm}^{-3}\text{sec}^{-1}$	$\delta np$	$1,65 \cdot 10^{14}$	$6 \cdot 10^{16}$	$\ll N$
Lifetime of free holes sec	$\tau_p$	$4,35 \cdot 10^{-10}$	$4,35 \cdot 10^{-10}$	$= \frac{1}{\alpha_{VA}A} =$ $= \text{const.}$
Lifetime of free electrons sec	$\tau_n$	$1,8 \cdot 10^{-4}$	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$\sim \frac{1}{\sqrt{g}}$ not constant

In Table I the magnitude of the terms in equations (1) — (4) are given. It may be seen that the majority of them may be neglected and in the approximate solution of the equations only the underlined terms are to be considered. Since  $A - A^+ \gg A^+$  up to very high excitation densities,  $\tau_p$  can be considered as constant. This is very useful when solving the steady state equations.

The diffusion terms in equations (1) — (4) were hitherto neglected in the analysis of luminescence phenomena. This can be done generally for photon excitation, but the diffusion becomes significant if the range  $R$  of incident electrons is essentially smaller than the dimensions of the crystal and the ambipolar diffusion length of carriers released in the crystal. Thus equations (1), (3) and (4) become:

$$0 = g(x) - a_{CA} n^2 + D_n \operatorname{divgrad} n, \quad (8)$$

$$0 = a_{VA} pA - a_{CA} n^2, \quad (9)$$

$$0 = g(x) - a_{VA} pA + D_p \operatorname{divgrad} n. \quad (10)$$

In consequence of (9) the density  $N$  of emitted photons is given by:

$$N = a_{CA} n^2 = a_{VA} pA = p/\tau_p. \quad (11)$$

The luminescence emission can be described equally by the recombination of electrons or holes. This is a property of process 122122 and not generally valid. Since (10) is a linear differential equation, it is practical to solve it instead of solving (8).

Finally the possible application of the ROSE—BUBE [24] model must be considered, but up to the present attempts to use this model for cathodoluminescence processes have not been successful.

## 2.2. Oxide-type phosphors

Equations (1) — (4) are valid for photoconducting (sulphide-type) phosphors. In the oxide-type phosphors (e. g.  $Zn_2SiO_4$ -Mn etc.) the photon emission is associated with the radiative transition of an excited center, but it is not accompanied by photoconductivity. In both types of phosphors, cathodoluminescence emission takes place in consequence of energy transfer from high energy primary electrons through low energy internal secondaries to the luminescent centers. In the sulphide phosphors, the energy transfer is associated with the recombination (capture) of free holes by activator centers. In a similar manner it may be assumed that the excitation of luminescent centers in oxide-type phosphors takes place in consequence of recombination of internal secondaries or annihilation of electron-hole pairs. The decay time in sulphides is



determined by  $\tau_n$  (neglecting the effect of traps). The lifetime of internal secondaries in oxide-type phosphors is essentially smaller and the decay time is determined by the lifetime  $\tau_c$  of luminescent centers.

Attributing the energy transfer process to the recombination of released internal secondary electrons, the steady state cathodoluminescence may be described by:

$$0 = g(x) - n/\tau_n + D_n \operatorname{divgrad} n, \quad (12)$$

$$0 = n/\tau_n - A^e/\tau_c, \quad (13)$$

$$N = A^e/\tau_c, \quad (14)$$

if  $A \gg A^e$  and denoting the density of excited centers by  $A^e$ . Equation (12) is identical with (10). Experimentally no characteristic difference was observed between the  $L(V)$  curves of sulphide- resp. oxide-type phosphors. This fact justifies the application of equation (10) for both types of phosphors.

### 3. Analysis of the diffusion equation

Equation (10) is similar to the diffusion equation used by DEVORE for the analysis of photoconductivity. In the analysis of cathodoluminescence the following assumptions will be used:

1. The dimensions of the crystal are essentially larger than the range of incident electrons and the ambipolar diffusion length of released carriers.
2. A wide parallel electron beam is normally incident on the surface of the crystal.
3. The crystal is homogeneous in its bulk and free from internal barriers.
4. A simple crystal model assuming two sets of traps and activator levels is used.
5. Only the terms of equations (8) and (10) are considered. The other terms of equations (1) — (4) and space charge effects are fully neglected.
6. The surface recombination is radiationless.
7. Only one type of carrier is taken into consideration. In the analysis equation (10) is applied.

In consequence of assumptions 1)–2) the crystal can be considered as semi-infinite and a one-dimensional, plane geometry can be adopted.

In the calculations the  $x$ -axis is taken parallel with the incident electrons and the origin of the system is chosen on the crystal surface. Thus, equation (10) becomes:

$$0 = g(x) - p/\tau_p + D_p \frac{d^2 p}{dx^2}. \quad (15)$$

Equation (15) is valid for steady state 122122 processes. In the analysis of time dependent processes the simplifying assumptions 5) and 7) cannot be used and the effects of traps must be taken into account [12].

The diffusion of excitation energy is determined by the ambipolar diffusion of electrons and holes [25]. The distribution of excited activator centers is determined by the diffusion and recombination of minority carriers, i. e. holes in sulphide phosphors, and by the excitation density  $g(x)$ . Equation (15) corresponds to the fundamental equations of photoconductivity derived by RITTNER [32]:

$$g(x) = - \frac{1}{\Delta E} \frac{dP(x)}{dx} \quad (16)$$

using the symbols:

- $i_0$  = the bombarding current density;
- $P_0$  =  $i_0 V$  the incident beam power/cm<sup>2</sup>;
- $P(x)$  = the beam power at depth  $x$  in the crystal;
- $\Delta E$  = the work done to create an electron-hole pair;  
 $\Delta E = 13$  eV for ZnS—Ag—Cl [1];
- $R$  = the range of incident electrons.

In practice  $g(x)$  can be calculated by some approximate formula, e. g. by the KOLLER—ALDEN [26] or by the YOUNG [22] resp. FELDMAN [23] formula. According to KOLLER:

$$g(x) = - \frac{1}{\Delta E} \frac{3}{KV^2} P_0 \left( 1 - \frac{x}{KV^2} \right)^2 \text{ if } 0 < x < R, \quad (17)$$

$$g(x) = 0 \quad \text{if } x > R.$$

For ZnS crystals  $K = 1,8 \cdot 10^{-12} \text{ V}^{-2} \text{ cm}$  and

$$R = KV^b = KV^2. \quad (18)$$

The YOUNG formula is more simple:

$$g(x) = \frac{1}{\Delta E} \frac{P_0}{R} \text{ if } 0 < x < R, \quad (19)$$

$$g(x) = 0 \quad \text{if } x > R, \quad (20)$$

$$R = KV^b.$$

$K$  and  $b$  are material constants. According to YOUNG  $K = 11,5/\rho \cdot 10^{-6} \text{ cm}$  ( $\rho$  = the density of the crystal) and  $b = 1,35$ .

FELDMAN gives  $K = 63 \text{ \AA}$  and  $b = 2,4$  for ZnS resp.  $K = 12 \text{ \AA}$  and  $b = 3$  for Zn<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>. In (20)  $V$  is given in  $kV$  units.



The KOLLER—ALDEN formula gives a strongly decreasing excitation density, in contrast to YOUNG, who found a uniform excitation density over the penetration depth of primaries. The analysis was carried out for both kinds of laws.

### 3.1 The Koller—Alden approximation

Combining equations (10) and (17) gives:

$$0 = \frac{P_0}{\Delta E} \frac{3}{KV^2} \left(1 - \frac{x}{KV^2}\right)^2 - \frac{p}{\tau_p} + D_p \frac{d^2 p}{dx^2}. \quad (21a)$$

If  $0 < x < R$ . For  $x > R$ :

$$0 = -\frac{\tau_p}{p} + D_p \frac{d^2 p}{dx^2}. \quad (21b)$$

The solution of (21a) is:

$$p_1(x) = C_1 \exp \beta x + C_2 \exp -\beta x + \frac{a^2 \gamma}{\beta^2} x^2 - \frac{2a\gamma}{\beta^2} x + \frac{\gamma}{\beta_2} + \frac{2a^2 \gamma}{\beta^4} \quad (22a)$$

with the notations:

$$\beta^2 = \frac{1}{D_p \tau_p}, \quad \gamma = \frac{P_0}{D_p \Delta E} \frac{3}{KV^2}, \quad a = \frac{1}{KV^2}.$$

For  $x > R$ :

$$p_2(x) = C_3 \exp \beta x + C_4 \exp -\beta x. \quad (22b)$$

The constants  $C_1, \dots, C_4$  can be determined by the boundary conditions:

$$D_p p_1'(0) = S p_1(0), \quad (23a)$$

$$p_1(R) = p_2(R), \quad (23b)$$

$$p_1'(R) = p_2'(R), \quad (23c)$$

$$p_2(x) = 0 \quad \text{if } x \rightarrow \infty. \quad (23d)$$

The four boundary conditions are given by the surface recombination ( $S$  = the surface recombination velocity) and by the continuous distribution of holes (23b and 23c).  $p_2(x)$  vanishes for  $x \rightarrow \infty$ .

From (21a) – (23d) follow:

$$C_1 = -\frac{a^2\gamma}{\beta^4 a}, \quad a = \exp \beta R, \quad (24a)$$

$$C_2 = C_1 \frac{D_p \beta - S}{D_p \beta + S} - \frac{S}{D_p \beta + S} \left\{ \frac{2a\gamma}{\beta^2} \frac{D_p}{S} + \frac{\gamma}{\beta^2} + \frac{2a^2\gamma}{\beta^4} \right\}, \quad (24b)$$

$$C_3 = 0, \quad (24c)$$

$$C_4 = C_1 a^2 + C_2 + \frac{2a^2\gamma a}{\beta^4}. \quad (24d)$$

### 3.2 The Young approximation

Combining equations (10) and (19) gives:

$$0 = \frac{P}{\Delta ER} - \frac{p}{\tau_p} + D_p \frac{d^2 p}{dx^2} \quad \text{if } 0 < x < R \quad (25a)$$

and

$$0 = -\frac{P}{\tau_p} + D_p \frac{d^2 p}{dx^2} \quad \text{if } x > R. \quad (25b)$$

The solution of (25a, b) is similar to that of (22 a, b), the boundary conditions are identical with (23a–d).

$$p_1(x) = C_1 \exp \beta x + C_2 \exp -\beta x + \frac{\gamma}{\beta^2} \quad \text{if } 0 < x < R, \quad (26a)$$

$$p_2(x) = C_3 \exp \beta x + C_4 \exp -\beta x \quad \text{if } x > R, \quad (26b)$$

$$\beta^2 = \frac{1}{D_p \tau_p}, \quad \gamma = \frac{P_0}{\Delta E D_p R};$$

$$C_1 = -\frac{\gamma}{2a\beta^2}, \quad a = \exp \beta R, \quad (27a)$$

$$C_2 = \frac{\gamma}{2a\beta^2} \frac{S}{D_p \beta + S} \left( 1 - \frac{D_p \beta}{S} - 2a \right), \quad (27b)$$

$$C_3 = 0, \quad (27c)$$

$$C_4 = -a^2 C_1 + C_2. \quad (27d)$$



### 3.3. The calculation of the cathodoluminescence emission

The density  $N(x)$  of photons emitted is given by (11). The total number of photons emitted/cm<sup>2</sup> sec. the luminescence emission  $L(V)$ , can be calculated from the following expression ( $E_0$  is the average energy of photons):

$$L(V) = E_0 \int_0^{\infty} N(x) dx, \quad (28)$$

$$L(V) = \frac{E_0}{\tau_p} \left\{ \int_0^R p_1(x) dx + \int_R^{\infty} p_2(x) dx \right\}. \quad (29)$$

$L(V)$  can be calculated from (22a, b) or (26a, b). Thus:

$$L(V) = \eta_0 P_0 \left\{ 1 - \frac{3Q}{\beta R} \left[ 1 + \frac{2}{\beta^2 R^2} - \frac{2}{\beta R} - \frac{2}{\beta^2 R^2 a} \right] \right\} \quad (30)$$

according to the KOLLER—ALDEN approximation, resp.:

$$L(V) = \eta_0 P_0 \left\{ 1 - Q \frac{1 - \exp - \beta R}{\beta R} \right\} \quad (31)$$

using the YOUNG approximation. The intrinsic efficiency is defined as  $\eta_0 = \frac{E_0}{\Delta E}$ .

Formulas (30) and (31) contain  $Q$ ,  $Q = \frac{S}{D_p \beta + S}$ .  $Q$  is a parameter characteristic for loss through surface recombination. For very low surface recombination velocity:  $Q \cong 1$  and:

$$L(V) = \eta_0 P_0. \quad (32)$$

In a similar manner, for very low voltages  $R\beta \ll 1$  and for very large  $S:Q = 1$  and

$$L(V) = \eta_0 P_0 \left\{ 1 - Q \left( 1 - \frac{1}{4} \beta R + \frac{1}{20} \beta^2 R^2 - \dots \right) \right\} = \frac{\eta_0 P_0 \beta R}{4}, \quad (33)$$

resp.:

$$L(V) = \eta_0 P_0 \left\{ 1 - Q \left( 1 - \frac{1}{2} \beta R + \frac{1}{3} \beta^2 R^2 - \dots \right) \right\} = \frac{\eta_0 P_0 \beta R}{2}. \quad (34)$$

#### 4. The voltage dependence of cathodoluminescence

In formulas (30) and (31)  $L(V)$  is given in terms of  $\beta R$ . From the range-energy relation  $L(V)$  can be expressed by  $V$ . From (30) and (18) it follows:

$$L(V) = \eta_0 i_0 \left\{ V - 3Q \left[ \frac{1}{k\beta V^2} - \frac{2}{K^2\beta^2 V^4} + \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{2}{K^3\beta^3 V^6} (1 - \exp - \beta K V^2) \right] \right\}. \quad (35)$$

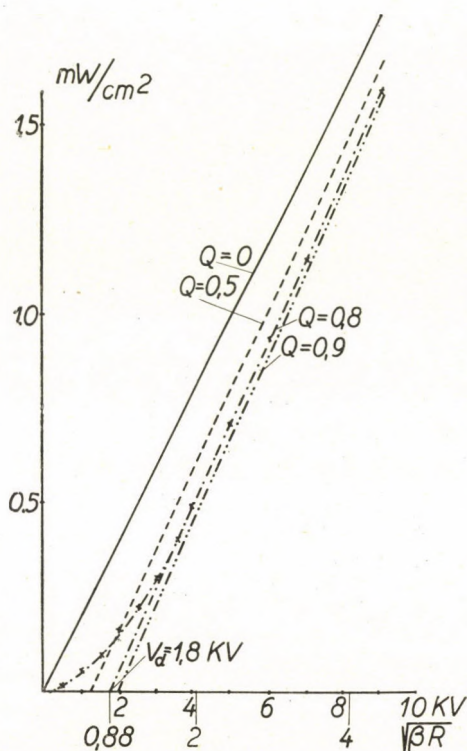


Fig. 2. Theoretical  $L(V)$  curves based on the KOLLER—ALDEN approximation. Experimental points denoted by (x)

In a similar manner, the YOUNG approximation gives:

$$L(V) = \eta_0 i_0 \left\{ V - Q \frac{1 - \exp - \beta K V^b}{\beta K V^{b-1}} \right\}. \quad (36)$$



Equations (30) — (36) contain  $\beta$ . Since

$$\beta = \frac{1}{\sqrt{D_p \tau_p}} = \frac{1}{L} \quad (37)$$

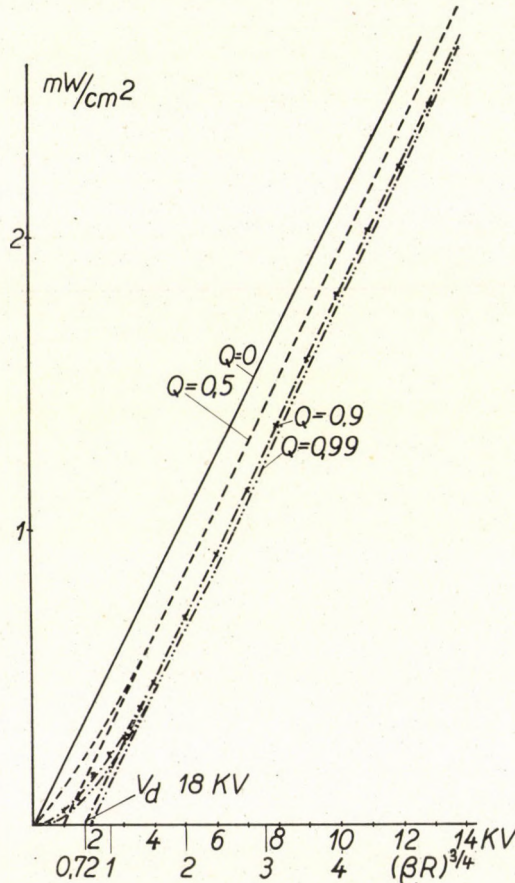


Fig. 3. Theoretical  $L(V)$  curves based on the YOUNG approximation. Experimental points denoted by (x)

the diffusion length of minority carries  $L$  resp. the ambipolar diffusion length may be determined by comparing the theoretical and experimental  $L(V)$  curves.  $\beta$  is an unknown quantity, thus, to facilitate the calculation formulas (30) and (31) were used. The theoretical  $L(V)$  curves were fitted to the experimental ones and plotted against  $\sqrt{\beta R}$  according to (18) resp. versus  $(\beta R)^{1/b}$  according to (20), since  $V$  is proportional to  $(\beta R)^{1/b}$ .

The calculations were carried out for several values of  $Q$  using the KOLLER-ALDEN ( $b = 2$ ), YOUNG ( $b = 4/3$ ) and FELDMAN ( $b = 2,4$  for ZnS) range-

energy relations. The results are presented in Figs. 2—4. The shape of the theoretical  $L(V)$  curves is similar to that of the experimental one presented in Fig. 1. The theoretical curves exhibit a low voltage tail and linear section the intersection  $(\beta R_d)^{1/b}$  of which with the horizontal axis corresponds to the dead voltage. The theoretical value of  $V_d$  depends on  $Q$  and  $\beta$ , i. e. on the presumed

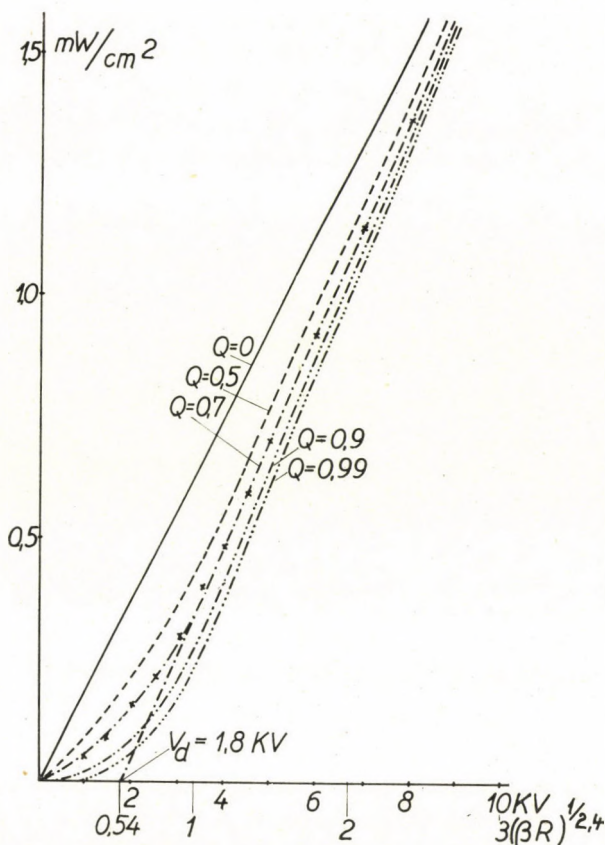


Fig. 4. Theoretical  $L(V)$  curves based on the YOUNG—FELDMAN approximation. Experimental points denoted by (x)

surface recombination velocity and diffusion length. By suitable choice of  $Q$  the experimental curve can be fitted to a certain curve of Figs. 2—4. When matching, the vertical scale is given by a high voltage (8—10 kV) experimental point, the horizontal one is determined by the experimental  $V_d$ .

The intersection of the linear section with the horizontal axis varies with  $Q$  in the Figures but it falls into the interval  $(\beta R_d)^{1/b} \sim 0,5-1$ . Thus the magnitude of  $\beta$  is given by  $R_d = KV_d^b$ . This is not surprising. As described in [1—4] the dead voltage is attributed to the dead surface layer of crystals.



In this way the dead layer has obtained a physical interpretation. Its thickness has the magnitude of the ambipolar diffusion length of released carriers, lost on the crystal surface by recombination.

The low voltage tail of the theoretical  $L(V)$  curves is determined by the value of  $Q$ , i. e. it is connected with the surface recombination velocity.

#### 4.1. Experimental results

The evaluation of experimental results will be presented on hand of a cub. ZnS—Ag—Cl sample, discussed in [1, 2].  $V_d = 1,8$  kV was found for the microcrystalline sample.

A good agreement of theoretical and experimental data was obtained by applying anyone of the approximations mentioned and the results were only slightly different. The fitting of the curves gives:

$$(\beta R_d)^{\frac{1}{2}} = 0,88 \quad Q = 0,8 \text{ (KOLLER—ALDEN),}$$

$$(\beta R_d)^{\frac{3}{4}} = 0,72 \quad Q = 0,9 \text{ (YOUNG),}$$

$$(\beta R_d)^{\frac{1}{2,4}} = 0,54 \quad Q = 0,7 \text{ (YOUNG—FELDMAN).}$$

Evaluating the results gives:

$$L = \frac{R_d}{0,88^2} = \frac{KV_d^2}{0,782} = 755 \text{ \AA (KOLLER—ALDEN),}$$

$$L = \frac{R_d}{0,72^{4/3}} = \frac{KV_d^{1,33}}{0,645} = 955 \text{ \AA (YOUNG)}$$

and

$$L = \frac{R_d}{0,54^{1/2,4}} = \frac{KV_d^{2,4}}{0,228} = 1130 \text{ \AA (YOUNG—FELDMAN).}$$

The magnitude of the diffusion length is the same, 0,1 micron for each approximation, proving their practical usefulness. Perhaps the recent values of FELDMAN are the most reliable.

The surface recombination velocity can be calculated from the experimental values of  $Q$  and  $\beta$

$$S = \frac{\beta D_p Q}{1 - Q} = \frac{Q}{1 - Q} \frac{1}{L} \frac{kT}{e} \mu_p \quad (38)$$

according to EINSTEIN's law. It is merely the magnitude of  $S$  that can be estimated because formula (38) contains  $D_p$  resp.  $\mu_p$ , being an uncertain quantity.  $\mu_p$  can, however, be calculated from  $L$  and  $\tau_p$ :

$$\mu_p = \frac{eL^2}{kT\tau_p}. \quad (39)$$

Unfortunately, the exact value of  $\tau_p$  is uncertain since it may be only estimated from  $\tau_p = 1/a_{VA}A$ ,  $a_{VA}$  being uncertain. Its magnitude varies between  $10^{-8} - 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ sec}^{-1}$  [18, 19]. Using the YOUNG-FELDMAN value of  $L$

$$\mu_p = 11,5 \quad \text{resp.} \quad 115 \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{sec}^{-1}$$

for

$$a_{VA} = 10^{-9} \quad \text{resp.} \quad 10^{-8} \quad (\tau_p = 4,35 \cdot 10^{-10} \quad \text{resp.} \quad 10^{-11} \text{ sec}).$$

The value 11,5 is more reasonable for the mobility of holes in ZnS microcrystals.  $\mu_p$  varies between  $1-100 \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{ sec}^{-1}$ . With  $\mu_p = 11,5$

$$S = 1,58 \cdot 10^5 \text{ cmsec}^{-1} \quad (\text{KOLLER-ALDEN}),$$

$$S = 2,82 \cdot 10^5 \text{ cmsec}^{-1} \quad (\text{YOUNG}),$$

$$S = 6,16 \cdot 10^4 \text{ cmsec}^{-1} \quad (\text{YOUNG-FELDMAN}).$$

According to the uncertainty of  $\mu_p$   $S$  varies between  $6 \cdot 10^3 - 10^6 \text{ cmsec}^{-1}$ . The latter value is very high but not impossible for irregular-shaped microcrystals, its upper limit being given by the thermal velocity. Unfortunately, large single crystals were not at our disposal, but the microcrystals studied (diameter 8-15 micron) fulfilled the conditions of the first assumption in 3.1) as to the magnitude of  $L$  ( $\sim 0,1$  micron) and  $R$  ( $\sim 1$  micron).

A detailed study of the voltage dependence of cathodoluminescence was given in [1, 2]. The diffusion length in phosphors described in [1] was calculated. Since  $K$  and  $b$  were given only for ZnS and  $\text{Zn}_2\text{SiO}_4$  by KOLLER resp. FELDMAN, the evaluation was carried out using YOUNG's data for each sample. Willemite was analysed by FELDMAN's formula too. The results are summarized in Table II.

Using FELDMAN's formula  $L = 213 \text{ \AA}$  was obtained for a  $\text{Zn}_2\text{SiO}_4$ -Mn sample with  $V_d = 1,1 \text{ kV}$ , contrary to  $680 \text{ \AA}$  derived from YOUNG's data. The discrepancy is due to  $K = 12 \text{ \AA}$  given by FELDMAN. This latter value seems to be very low and needs further confirmation. The densities of ZnS (4,1) and of willemite (4,2) crystals are practically equal, the great difference in their  $K$  values is improbable.



Table II

Phosphor	Dead voltage kV	Diffusion length Å	
		YOUNG	FELDMAN
Hex.ZrS—Ag—Cl	1,4—1,8	680—955	620—1130
Cub.ZrS—Ag—Cl	1,4—1,8	680—955	620—1130
Hex.ZrS—Cu—Cl	2	1100	1525
Cub.ZnS—Cu—Cl	1,8	955	1130
Hex.ZnS—Cl	1,4	680	620
50 ZnS—50 CdS—Ag—Cl	1,4—2,3	620—1220	
Zn <sub>2</sub> SiO <sub>4</sub> —Mn	1—1,1	595—680	213
(ZnBe) <sub>2</sub> SiO <sub>4</sub> —Mn	1	430	
(CaMg)(SiO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> —Ti	1,33	750	
Mg <sub>2</sub> WO <sub>5</sub>	1,5	550	
CaWO <sub>4</sub>	1,6	550	
3 Ca <sub>3</sub> (PO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> CaFCl—Mn—Sb	0,95	520	
ZnO	2,4—3,3	1140—2190	

The magnitude of the ambipolar diffusion length in several phosphors varies between 0,05—0,2 micron, their  $Q$  values vary between 0,7—0,9, thus, their surface recombination velocity has the same high magnitude as that of the ZnS—Ag sample.

#### 4.2. Comparison with the results of other authors

The diffusion length of low energy internal secondaries excited by high energy  $\beta$  and  $\gamma$  rays in luminescent crystals was estimated by KALLMANN [12]. KALLMANN studied the influence of traps upon the buildup of luminescence excited by high energy but very low intensity radiation. The radius of excitation channels has the magnitude of the diffusion length and varies between 0,05—0,18 microns for ZnO resp. ZnS type phosphors. KALLMANN attributes it to internal secondary electrons.

DANIEL and coworkers [27] estimated the magnitude of the diffusion length in ZnS type phosphors, when studying the modulation of photoluminescence by electric fields, to be 0,1 micron.

KALLMANN's and DANIEL's results are in good agreement with our data. A similar confirmation is given by the recent investigations of EHRENBERG studying the penetration of electrons into luminescent crystals [28, 33].

The author is not aware of other data relating to luminescent crystals. Recently several authors have published data on the diffusion phenomena

in photoconductors [25, 29–31]. These will be discussed in Part II of this paper. Here only DIEMER's [29] results shall be mentioned. DIEMER has found 0,1 micron for the diffusion length of holes in CdS, his value was determined by the photoelectromagnetic effect.

### Acknowledgements

The author wishes to express his sincere thanks to Dr. Z. Bodó, Dr. T. A. HOFFMANN and Professor Dr. E. NAGY for valuable discussions.

### REFERENCES

1. Gy. GERGELY, *Z. Phys. Chem.*, **211**, 274, 1959.
2. Gy. GERGELY and I. HANGOS, Symposium on Solid State Physics in Electronics and Telecommunications, Bruxelles 1958, Academic Press, London, 1960. Vol. 4. p. 724.
3. Gy. GERGELY *Acta Phys. Hung.* **12**, 253, 1961.
4. P. H. DOWLING and J. R. SEWELL, *Journ. El. Chem. Soc.*, **100**, 22, 1953.
5. M. KNOLL and B. KAZAN, *Storage Tubes*, J. Wiley, New-York, 1952.
6. A. BRIL, *Brit. Journ. Appl. Phys.*, No. 4, 10, 1954.
7. E. J. STERNGLASS, *Phys. Rev.*, **95**, 345, and J. E. HOLLIDAY und E. J. STERNGLASS, *Journ. Appl. Phys.*, **28**, 1189, 1957.
8. K. G. MCKAY, *Phys. Rev.*, **74**, 1606 1948; **77**, 816, 1950.
9. A. G. CHYNOWETH, *Phys. Rev.*, **83**, 254, 264, 1951.
10. W. RUPPEL, *Helv. Phys. Acta*, **31**, 311, 1958 and private communication.
11. M. LAMPERT, *Phys. Rev.*, **103**, 1648, 1956.
12. H. KALLMANN and J. DRESSNER, *Phys. Rev.*, **114**, 71, 1959.
13. I. BROSER (private communication).
14. H. B. DEVORE, *Phys. Rev.*, **102**, 86, 1956.
15. A. H. BENNY and F. D. MORTEN, *Proc. Phys. Soc.*, **72**, 1007, 1958.
16. H. U. HARTEN, *Philips Res. Repts.*, **14**, 346, 1959.
17. T. TING-YUAN and K. KUO-YU, *Tagung Festkörperphysik und Physik der Leuchtstoffe*, Erfurt 1957, p62; Akademie Verlag Berlin, 1958.
18. M. SCHÖN, *Physica*, **20**, 930, 1954. *Halbleiterprobleme* **4**, 282, 1958, Vieweg, Braunschweig.
19. H. A. KLASENS, *Journ. Phys. Chem. Solids*, **7**, 165, 1958.
20. I. U. M. POPOV and V. P. SHABANSKII, *Optics and Spectroscopy*, **6**, 500, 1959.
21. H. KALLMANN and E. SUCOV, *Phys. Rev.*, **109**, 1473, 1958.
22. J. R. YOUNG, *Journ. Appl. Phys.*, **28**, 524, 1957.
23. C. FELDMAN, *Phys. Rev.*, **117**, 455, 1960.
24. R. H. BUBE, *Journ. Phys. Chem. Solids*, **1**, 234, 1957.
25. I. BROSER and R. BROSER-WARMINSKY, *Journ. Phys. Chem. Solids*, **6**, 386, 1958.
26. L. R. KOLLER and E. D. ALDEN, *Phys. Rev.*, **83**, 684, 1951 and L. R. KOLLER and H. D. COCHILL, *Journ. Appl. Phys.*, **29**, 1064, 1958.
27. P. J. DANIEL, R. F. SCHWARZ, M. E. LASSER and L. W. HERSHINGER, *Phys. Rev.*, **111**, 1240, 1958.
28. W. EHRENBERG and J. FRANKS, *Proc. Phys. Soc.*, B **66**, 1057, 1953 and W. EHRENBERG's private communication.
29. G. DIEMER, G. J. VAN GURP and W. HOOGENSTRAATEN, *Philips Res. Repts.*, **13**, 458, 1958; **14**, 11, 1959 and *Journ. Phys. Chem Solids.*, **2**, 119, 1957.
30. J. AUTH and R. RIDDER, *Ann. Phys.*, **20**, 210, 1957; **2**, 351, 1959.
31. M. BALKANSKI and I. BROSER, *Z. Elektrochem.*, **61**, 715, 1957.
32. E. RITNER, *Photoconductivity Conference*, Atlantic City, 1954. John Wiley, New York, 1956, p. 215.
33. Gy. GERGELY, *Proc. Phys. Soc.*, **76**, 437, 1960.



ДИФфуЗИОННЫЕ ЯВЛЕНИЯ ПРИ ПРОЦЕССАХ, ВОЗБУЖДЕННЫХ  
ЭЛЕКТРОННОЙ БОМБАРДИРОВКОЙ

## I. Катодолюминесценция

ДЬ. ГЕРГЕЛЬ

## Резюме

В работе дается анализ процессов, возбужденных электронной бомбардировкой; принимаются во внимание и поверхностная рекомбинация и диффузия. Комбинируются диффузионное уравнение Дэвора и законы Коллера—Алдена, Юнга и Фельдмана, описывающие потери энергии и глубину проникновения электронов.

Катодолюминесценция описывается на основе модели Шэн—Клазенса. Люминесцентные процессы при условиях возбуждения 1—15 kV,  $1 \mu\text{A}/\text{cm}^2$  могут быть охарактеризованы в люминофоре ZnS кодовым номером 122122 Клазенса. Диффузия неосновных носителей зарядов описывается линейным дифференциальным уравнением.

Кривая зависимости яркости от напряжения, определенная теоретически, хорошо согласуется с данными опыта. Анализом кривых определялись диффузионная длина  $L$  и скорость поверхностной рекомбинации  $S$ . Для этих величин в случае многих люминофоров получены значения:

$L = 0,05 - 0,2$  микрон и  $S = 6 \cdot 10^3 - 10^6$  см. сек<sup>-1</sup>. Оценка времени жизни и подвижности дырок в ZnS приводит к результатам:  $\tau_p = 4,4 \cdot 10^{-10}$  сек,  $\mu_p = 11$  см<sup>2</sup>/Всек.

# ÜBER DIE INTERFERENZ VON PHOTONEN

Von

TH. NEUGEBAUER

INSTITUT FÜR THEORETISCHE PHYSIK DER ROLAND EÖTVÖS UNIVERSITÄT, BUDAPEST

(Vorgelegt von K. Novobáitzky. — Eingegangen: 4. VIII. 1960)

Zur Aufklärung des Paradoxons, demgemäss im sichtbaren und in den noch kurzwelligeren Gebieten ein Lichtquant wenigstens dem Anscheine nach nur mit sich selbst interferiert, im Radiowellengebiet dagegen verschiedene Photonen notwendigerweise miteinander interferieren müssen, wird die Frage, was eigentlich geschieht, wenn ein quantenmechanisches System nacheinander mehrere Photonen emittiert, näher betrachtet. Dabei wird gezeigt, dass bei Molekülen, Atomen, Atomkernen usw. zwischen den aufeinander folgenden Photonen keine Phasenbeziehungen bestehen, für diese Art der Aussendung von Lichtquanten wird deshalb die Benennung phasendiskontinuierliche Emission vorgeschlagen. Im Falle einer Radioantenne muss dagegen jedes Photon die Phase des unmittelbar vorangehenden notwendigerweise fortsetzen. Diese Erscheinung nennen wir phasenkontinuierliche Emission. Weiter wird gezeigt, dass bei der ersten Art der Aussendung von Lichtquanten die von der Wechselwirkung von verschiedenen Photonen verursachten Interferenzerscheinungen sich zeitlich notwendigerweise herausmitteln müssen, also für uns unbeobachtbar bleiben, bei der zweiten Art dagegen nicht. Zwei Fälle, in denen Übergänge zwischen diesen beiden Arten der Emission auftreten, werden besprochen.

## Einleitung

Bekannterweise wurde die Theorie der Interferenz- und Diffraktionserscheinungen nach der klassischen elektromagnetischen Theorie sehr weitgehend ausgearbeitet, und alle erhaltenen Resultate wurden dabei auf experimentellem Wege glänzend bestätigt. Nach der Entdeckung der Quantenmechanik bzw. der Photonentheorie entstand dann das Problem, wie man diese klassischen Resultate im Sinne der Quantenmechanik umzudeuten habe. Dabei hat sich der Gedanke, dass das klassische Prinzip, demgemäss nur kohärente Lichtstrahlen miteinander interferieren, durch das Gesetz zu ersetzen ist, demgemäss ein Lichtquant nur mit sich selbst interferiert, im sichtbaren und in den angrenzenden Gebieten bestens bewährt. Ebenso führt dieses Prinzip bei der Deutung der Röntgeninterferenzerscheinungen und auch im  $\gamma$ -Strahlengebiet auf keinen Widerspruch. Es sei nur noch bemerkt, dass man für die Kohärenzlänge des sichtbaren Lichtes ungefähr  $1\frac{1}{2}$  m gefunden hat (neuerdings ist es sogar gelungen, durch sehr saubere Versuchsbedingungen diese Länge auf einige Meter zu erhöhen). Wir können also diese Distanz im allgemeinsten Sinne des Wortes als eine »Ausdehnung« der Lichtquanten im sichtbaren Gebiet deuten.



Selbstverständlich führt die klassische elektromagnetische Theorie auch im Gebiet der Radiowellen zu Resultaten, die mit der Erfahrung vollständig übereinstimmen. Wenn wir jedoch auch hier das erwähnte Prinzip, dass ein Photon nur mit sich selbst interferiert, anwenden wollen so stossen wir gleich auf Widersprüche. Davon seien nur einige erwähnt: Bekannterweise interferieren bei dem Empfang eines entlegenen Senders die bodennahe, und die an der Ionosphäre reflektierte Welle miteinander (Fading). Nach dem erwähnten Prinzip müsste man also jetzt annehmen, dass diese um wenigstens neun Grössenordnungen kleineren Quanten eine »Ausdehnung« von der Grössenordnung von wenigstens 100 km haben. Abgesehen davon interferieren ja aber auch Wellen miteinander, die von zwei geographisch voneinander sehr weit liegenden Sendern emittiert werden, und es wäre jedenfalls eine sehr abenteuerliche Hypothese anzunehmen, dass man diese noch als ein einziges quantenmechanisches System betrachten könnte und dass sie demzufolge gemeinsam ein Photon emittieren würden. Es interferieren ausserdem auch in einem Transponierungsempfänger die empfangene und die lokal von der Oszillatorenröhre erzeugte Welle. Weiter interferieren ja ebenfalls die von zwei Generatoren erzeugten technischen Wechselströme miteinander, was das erwähnte Paradoxon noch komplizierter macht.

Die Annahme, dass Photonen im sichtbaren und in den angrenzenden Gebieten und ausserdem im Röntgen- und  $\gamma$ -Strahlengebiet zwar tatsächlich nur miteinander interferieren, im Radiowellengebiet dagegen nicht, wäre jedenfalls mit sehr grossen theoretischen Schwierigkeiten verbunden. Man müsste dann z. B. annehmen, dass zwischen dem Ultrakurzwellengebiet und den infraroten Gebiet (die kontinuierlich ineinander übergehen) ein Intervall liegen muss, in dem verschiedene Lichtquanten miteinander »teilweise« interferieren usw. Man kann ja durch technisch (z. B. von Klystronen) erzeugte elektromagnetische Wellen Quantensprünge (z. B. Rotationsübergänge von mehratomigen Molekülen) anregen, was das erwähnte Paradoxon sehr anschaulich zeigt.

## § 1

Um diesen sehr ernst aussehenden Widerspruch aus der Theorie beseitigen zu können, wollen wir zuerst das Problem der sukzessiven Aussendung von mehreren Photonen von demselben System (Atom, Radioantenne usw.) betrachten.

Sehen wir uns also zuerst den Fall an, in dem ein angeregtes Atom seine ganze Energie nicht in einem einzigen Quantensprung verliert, sondern mehrere Photonen nacheinander in einer Kaskade emittiert. Es ist klar, dass nach der Aussendung von jedem Quant das fragliche Atom in einem ganz anderen Quantenzustand zurückbleiben wird, die aufeinanderfolgenden Photonen besitzen ausserdem eine voneinander ganz verschiedene Frequenz usw. Zwischen



diesen Photonen werden also keine Phasenbeziehungen bestehen. Klassisch gesprochen gehören zu ihnen inkohärente Wellenzüge. Genau dieselben Verhältnisse werden auch im Röntgen- und  $\gamma$ -Strahlengebiet auftreten. Wir wollen diese Art der Aussendung von Photonen *phasendiskontinuierliche Emission* nennen.

Genau der entgegengesetzte Fall liegt im Radiowellengebiet vor. Die kleine Energie eines ausgesandten Photons ist hier nämlich im Vergleich zur Energie der Antenne eines Senders absolut unbedeutend. Nach der Aussendung eines solchen Quants bleibt also das Betrachtete »quantenmechanische System« praktisch in demselben Zustande zurück. Das darauffolgend emittierte Quant wird also nicht nur dieselbe Frequenz besitzen, sondern muss auch die Phase des vorangehenden fortsetzen. Wäre das nämlich nicht der Fall, so würde man mit den einfachsten radiotechnischen Erfahrungen in die krassensten Widersprüche geraten und ausserdem selbstverständlich auch mit dem Korrespondenzprinzip der Quantentheorie. Ebenso müssen die von der Antenne gleichzeitig emittierten Quanten dieselbe Phase besitzen usw. Wir wollen diese ganz andere Art der Aussendung von Photonen *phasenkontinuierliche Emission* nennen.

Wenn es also zwei so grundverschiedene Arten der Lichtquantaussendung gibt, so entsteht wieder die Frage, ob auch Übergangsfälle zwischen diesen zwei extremen Arten der Emission vorkommen, wie ja das in der Natur meistens zu sein pflegt. Tatsächlich sind solche intermediäre Fälle denkbar, und wir wollen von diesen zwei ganz typische besprechen.

§ 2

Betrachten wir also zuerst ein sehr langes und fast ganz starres (undehnbares) lineares Molekül, das also ein sehr grosses Trägheitsmoment ( $I$ ) besitzt, und nehmen wir an, dass es auch ein elektrisches Dipolmoment parallel zu seiner Achse hat und ausserdem, dass seine (kinetische) Rotationsenergie  $E_{rot}$  sehr gross ist. Bezeichnen wir die auftretende Winkelgeschwindigkeit mit  $\dot{\varphi}$  und die dazugehörige Rotationsfrequenz mit  $\nu_{kl}$ , so haben wir nach der klassischen Theorie

$$E_{rot} = \frac{1}{2} I \dot{\varphi}^2 \quad \text{und} \quad \nu_{kl} = \frac{\dot{\varphi}}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} \left( \frac{2 E_{rot}}{I} \right)^{1/2}. \quad (1)$$

Das Wechselfeld eines sich drehenden Dipols können wir als das Feld von zwei in zueinander senkrechten Richtungen (mit der Phasendifferenz  $\pi/2$ ) oszillierenden Dipolen beschreiben, welche einzeln bekannterweise das Feld

$$|E| = |H| = \left| \frac{1}{c^2} \frac{\ddot{p}}{r} \sin \vartheta \right| \quad (2)$$



erzeugen. Aus (2) kann man dann mit Hilfe des Poyntingschen Vektors die Emission der elektromagnetischen Strahlung berechnen.

Behandeln wir jetzt dasselbe Problem nach der Quantenmechanik und bezeichnen wir die auftretende Rotationsquantenzahl mit  $j$ . Dann folgt

$$E_j = \frac{h^2}{8\pi^2 I} j(j+1) \quad (3)$$

und

$$v_{qu} = \frac{E_{j+1} - E_j}{h} = \frac{h^2}{8\pi^2 I h} 2(j+1). \quad (4)$$

Aus (3) und (4) folgt weiter

$$v_{qu} \approx \frac{1}{2\pi} \left( \frac{2 E_{j+\frac{1}{2}}}{I} \right)^{1/2}. \quad (5)$$

Vergleichen wir jetzt die klassische und die quantenmechanische Formel für die emittierte Frequenz (also (1) und (5)), so sehen wir, dass diese Ausdrücke eine weitgehend analoge Form haben. Der Unterschied besteht nur darin, dass in der klassischen Formel die momentane Rotationsenergie steht; diese nimmt also infolge der Emission von elektromagnetischer Strahlung kontinuierlich und monoton ab. In der quantenmechanischen Formel (5) steht dagegen statt dieser Energie ein gewisser Mittelwert der zum  $j$ -ten und zum  $(j+1)$ -ten Quantenzustand gehörenden (gequantelten) Energien, den wir mit  $E_{j+\frac{1}{2}}$  bezeichnet haben. Da jedoch nach unserer Annahme sowohl  $I$  als auch die kinetische Energie sehr gross sind, so muss  $j$  ebenfalls eine sehr grosse Zahl sein. Ausserdem wird dann die bei einem Rotationsübergang abgegebene Energie im Verhältnis zur ganzen Rotationsenergie recht klein sein. In diesem Falle geht also unsere quantenmechanische Formel (5) in die klassische (1) über. Es ist weiter klar, dass in diesem Falle zwischen den nacheinander kaskadenartig emittierten Rotationsquanten keine Phasensprünge auftreten können, weil ja sonst bei der schon fast ganz klassischen Rotation des Moleküls in der Winkelkoordinate ebenfalls ein Sprung auftreten müsste. Wir haben hier also einen Fall der erwähnten phasenkontinuierlichen Emission. Je deformierbarer wir jedoch das Molekül annehmen, desto mehr wird diese Phasenkonstanz verlorengehen. Ebenso tritt auch dieser Fall ein, wenn das Molekül schon durch sukzessive Emission von Rotationsquanten den grössten Teil seiner kinetischen Energie verloren hat, weil sich ja nach (4) bzw. (5) dann bei den aufeinanderfolgenden Emissionen die quantenmechanischen Frequenzen schon schnell ändern. Bei mittelgrossen Werten von  $j$  tritt also der Übergangsfall zwischen phasenkontinuierlicher und phasendiskontinuierlicher Emission auf.

§ 3

Als zweiten Fall wollen wir ein extrem stark angeregtes Wasserstoffatom betrachten, das seine Energie nur ganz allmählich auf die Weise verliert, dass die Hauptquantenzahl immer nur um eine Einheit abnimmt. (Der Einfachheit halber beschränken wir uns auf die Besprechung von Kreisbahnen, d. h. kugelsymmetrischen Eigenfunktionen.) Aus der klassischen Theorie würden wir für dieses Problem erhalten:

$$v_{kl} = \frac{v}{2\pi r}, \quad (6)$$

wo  $v$  die Geschwindigkeit und  $r$  den Halbmesser der Bahn bedeutet. Weiter folgen die bekannten Gleichungen

$$-m \frac{v^2}{r} = -\frac{e^2}{r^2} \quad (7)$$

und

$$E = E_{kin} + E_{pot} = \frac{1}{2} mv^2 - \frac{e^2}{r} = -\frac{1}{2} mv^2. \quad (8)$$

Aus (7) erhält man

$$r = \frac{e^2}{mv^2}, \quad (9)$$

und wenn wir dieses Resultat in (6) einsetzen

$$v_{kl} = \frac{mv^3}{2\pi e^2}. \quad (10)$$

Weiter folgt mit Hilfe von (8)

$$v_{kl} = \left[ \frac{2(-E)^3}{m} \right]^{1/2} \frac{1}{\pi e^2}. \quad (11)$$

Andererseits erhält man aus der Quantenmechanik (bzw. aus der Bohrschen Quantentheorie)

$$E_n = -\frac{2\pi^2 me^4}{h^2 n^2} \quad (12)$$

und

$$v_{qu} = \frac{E_{n+1} - E_n}{h} = \frac{2\pi^2 me^4}{h^3} \frac{(n+1)^2 - n^2}{(n+1)^2 n^2}. \quad (13)$$



Aus (12) und (13) folgt weiter

$$v_{qu} = \left[ \frac{(-E_{n+1})^3}{2m} \right]^{1/2} \frac{1}{\pi e^2} \cdot \frac{(2n+1)(n+1)}{n^2} \quad (14)$$

Vollführen wir den Grenzübergang  $n \rightarrow \infty$ , so geht (14) tatsächlich in (11) über. Es handelt sich also eigentlich wieder um den Fall, dass in der klassischen Formel (11) die augenblickliche Energie des Atoms steht, in der quantenmechanischen Formel (14) dagegen die des oberen Quantenzustandes. Der Unterschied zwischen den Formeln (11) und (14) verschwindet umso mehr, zu einer je grösseren Energie das Atom angeregt wird, weil mit zunehmender Hauptquantenzahl der relative Unterschied der Energien von zwei aufeinanderfolgenden Bohrschen Bahnen im Verhältnis zur Gesamtenergie immer geringer wird.

Bei sehr grossen Quantenzahlen muss also in dem hier betrachteten Fall die Emission wieder ganz phasenkontinuierlich ablaufen, weil man ja sonst, wenn man die klassische Formel (11) betrachtet, welche die klassische Umlauffrequenz des Elektrons angibt, wieder folgern müsste, dass das sich klassisch bewegende Elektron seine Winkelcoordinate sprunghaft ändert. Je mehr Energie jedoch das Elektron durch aufeinanderfolgende Emissionen von Lichtquanten verliert, desto mehr werden sich die Frequenzen der nacheinander ausgesandten Photonen voneinander unterscheiden; die Emission geht also immer mehr in die phasendiskontinuierliche über.

Es sei nur noch bemerkt, dass man zu Zeiten der Bohrschen Quantentheorie analoge »Korrespondenzbetrachtungen« besonders zur angenäherten Lösung von Intensitäts- und Polarisationsfragen oft angestellt hat.

#### § 4

Unsere obigen Betrachtungen führen also zu der Schlussfolgerung, dass die Annahme, dass Photonen nur mit sich selbst interferieren, ganz unhaltbar ist. Lichtquanten interferieren auch miteinander, ebenso wie nach der klassischen Betrachtungsweise zwei alternierende elektromagnetische Felder miteinander interferieren. Im sichtbaren Gebiet (sowie in den angrenzenden Gebieten und im Röntgen- und  $\gamma$ -Strahlengebiet) bleibt jedoch diese Erscheinung unmerkbar, weil die auftretenden Interferenzerscheinungen sich ebenso herausmitteln wie nach der klassischen Theorie die Interferenz von zwei inkohärenten Lichtstrahlen oder von unterbrochenen (phasendiskontinuierlichen) Wellenzügen, die man ja ebenfalls zueinander inkohärent nennt. Ganz der entgegengesetzte Fall liegt im Radiowellengebiet vor, weil dort die Emission phasenkontinuierlich abläuft und die Interferenzerscheinungen sich deshalb nicht herausmitteln. Übergänge zwischen diesen beiden extremen Fällen haben wir im § 2 und 3 besprochen.

Es sei nur noch hervorgehoben, dass infolge der neuen Auffassung der Interferenz von Photonen das Prinzip der Erhaltung der Energie selbstverständlich nicht verletzt wird, und auch die Zahl der Lichtquanten bleibt erhalten. Dies kann ebenso gezeigt werden, wie z. B. in der klassischen Theorie bei der Betrachtung der Wechselwirkung von zwei kohärenten Strahlen. Selbstverständlich muss man erstens die strenge Theorie der Interferenzerscheinungen anwenden und zweitens die ganze Interferenzerscheinung berücksichtigen und nicht etwa nur den auf einem Schirm aufgefangenen Teil davon.

## ОБ ИНТЕРФЕРЕНЦИИ МЕЖДУ ФОТОНАМИ

Т. НАЙГЕБАУЕР

### Резюме

Известен тот парадокс, что кванты света в области видимого света и еще меньшей длины волн — по крайней мере на вид — интерферируют только сами собой. В то же время в области радиоволн различные фотоны по необходимости должны интерферировать одни с другими. Для устранения данного противоречия подробно исследуется вопрос, что происходит на самом деле при одновременном испускании квантовомеханической системой нескольких фотонов. В связи с этим показывается, что в случае молекул, атомов, ядер атомов и др. между фотонами, следующими одни за другими, нет никакой фазовой связи. Для испускания квантов света по упомянутому способу предлагается наименование фазопрерывной эмиссии. Однако при излучении радиоантенны фаза каждого фотона должна следовать за фазой фотона, непосредственно опережающего его. Это явление носит название фазопрерывной эмиссии. Далее показывается, что при испускании квантов света первым способом явления интерференции, происходящие в результате взаимодействия разных фотонов, по необходимости усредняются во времени, в результате чего они для нас не являются наблюдаемыми. При другом способе испускания этого не произойдет. Отдельно обсуждаются два случая, в которых между данными видами эмиссии происходит переход.





# ON THE NEUTRAL DECAY PRODUCTS OF MUONS

By

P. VÉRTES

INSTITUTE OF THEORETICAL PHYSICS, ROLAND EÖTVÖS UNIVERSITY, BUDAPEST

(Received 22. V. 1960)

## 1. Introduction

Among the decay products of muons only the electron is charged, and one may infer the properties of the other two particles of half spin only by observing the general properties of the decay electron. According to general opinion the neutrinos arising at the muon decay and at the  $\beta$ -decay are identical. This statement means that in the "weak current" the neutral particle coupled with the electron and that coupled with the muon are the same:

$$\mu^- \rightarrow e^- + \nu + \bar{\nu}, \quad p \rightarrow n + \bar{e} + \nu.$$

Recently, however, KAWAKAMI [1] and others have suggested that experimental evidence available so far allows to suppose that the neutral particle of zero mass ( $\lambda$ ) connected with the muon in the "weak current" and the neutrino arising at  $\beta$ -decay connected with the electron are not the same:

$$\begin{aligned} \mu^+ &\rightarrow e^+ + \nu + \bar{\lambda}, & n &\rightarrow p + e^- + \bar{\nu}, \\ \mu^- &\rightarrow e^- + \lambda + \bar{\nu}, & p &\rightarrow n + e^+ + \nu. \end{aligned}$$

In the series of the parity experiments it was proved that the neutrino (emitted at positive  $\beta$ -decay) was left-hand polarized ( $\nu_L$ ). It has been supposed that the right-hand neutrino ( $\nu_R$ ) does not occur in nature. However, KAWAKAMI has suggested that it does, but that it arises from the decay of the muons. With our notation  $\nu_R = \tilde{\lambda}$ . (In our notation the particles are connected in weak interaction with negative, the antiparticles with positive helicity [2].) In this manner KAWAKAMI has succeeded in excluding with the help of the assumption of conservation of lepton number [3] and neutrino charge [4] (or with the conservation of the restricted lepton number  $-e\nu$  — and with the separate conservation of the muon number  $\mu\lambda$  — [2]) certain processes which do not occur in nature (e. g.  $\mu^- \rightarrow e^- + e^- + e^-, \mu \rightarrow e + \gamma$ ).



Let us now consider the possible results of experiments which will enable us to decide between the two theories. If  $\nu \equiv \lambda$ , then the neutral particle arising from  $\mu^-$ -decay could induce  $\beta^-$ -decay; if  $\nu \neq \lambda$  then this possibility is excluded. The neutral antiparticle of  $\mu^-$ -decay certainly is  $\bar{\nu}$  which is able to induce  $\beta^+$ -decay. (In the same way one can say that at the decay of pions certainly  $\lambda$  arises and it can induce  $\beta^-$ -decay only in the case of  $\lambda \equiv \nu$ .) Thus

$$\mu^- \rightarrow e^- + \lambda + \bar{\nu} \quad \bar{\nu} + p \rightarrow n + e^- \text{ is always allowed;}$$

$$\mu^- \rightarrow e^- + \bar{\nu} + \lambda \quad \nu + n \rightarrow p + e^+ \text{ is allowed only if } \lambda \equiv \nu.$$

The latter is a decisive process by which it is possible to distinguish between the two theories [2]. There are three experimental possibilities available:

- a) One induces  $\beta^\mp$ -decay with the neutrino beam arising from  $\mu^\mp$ -decay.
- b) One looks for

$$\mu^- + n \rightarrow p + e^- + e^- + \bar{\nu}, \quad (1)$$

$$\mu^+ + n \rightarrow n + e^+ + e^- + \nu. \quad (2)$$

at the collision of a free muon with a nucleus.

c) At the decay of  $\mu$ -mesic atoms one looks for a capture like  $\mu^- + n \rightarrow p + e^- + e^- + \bar{\nu}$  besides the capture like  $\mu^+ + p \rightarrow n + \lambda$ . (The decay of  $\mu^-$  occurring in the  $K$ -shell induces the  $\beta^-$ -decay of the nucleus.)

## 2. The absorption of free neutrinos arising from muon decay

The absorption cross section for  $\nu + n \rightarrow p + e^-$  is

$$\sigma_{abs} \simeq \frac{f^2 q^2}{10} \text{ cm}^2, \quad (\hbar = c = 1),$$

where  $f$  is the coupling constant,  $f \simeq 10^{-32} \text{ cm}^2$ ,  $q$  is the momentum of the neutrino. The cross section for a neutrino of 100 MeV is about  $10^{-41} \text{ cm}^2$ . If the flux muons (or pions) is e. g.  $10^5$  muons/sec, the flux of  $\lambda$  is roughly the same. If the muons go e. g. through an absorber of a thickness of  $10^4 \text{ gcm}^{-2}$  we may expect  $10^{-9}$  absorptions per second. The cross section depends on the square of the momentum of the neutrino, however, it is difficult to produce a large intensity at high energy.

### 3. The weak interaction of second order of muons with nuclei

Let us consider e. g. the second order process ( $\lambda$ ) (Fig. 1). If the theory of the single neutrino is right, this process must occur, but if  $\lambda \neq \nu$  it is strictly forbidden. Its estimated cross section supposing  $\lambda \neq \nu$ , is

$$\sigma \simeq \frac{3 \cdot 10^{-8} f^4 E_\mu^9}{|p_\mu| (p_\mu^2 + E_\mu^2)} \text{ cm}^2.$$

We see that this cross section grows rapidly with the energy of the muon, but at 16 eV it is not more than  $2,5 \cdot 10^{-54} \text{ cm}^2$ . The cross-section of the first order

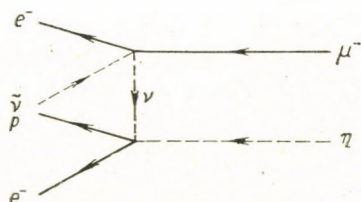


Fig. 1

process  $\mu^- + p \rightarrow n + \lambda$  at 1 GeV is  $1,2 \cdot 10^{-44} \text{ cm}^2$  which is rather bigger than the former one, but its value depends on the square of energy.

### 4. Second order interaction at the decay of $\mu$ -mesic atoms

It is known that the negative muon may be captured into an atomic orbit. In the next process it will either disintegrate or it will be captured by a proton of the nucleus. Rarely can a capture decay like(2) occur. Let us estimate the probability for this. The calculation here differs from that of §3 because we must consider the muon state as a bound state instead of a plane-wave state. Describing the 1S state approximately non-relativistically, we arrive at the following probability pro sec for this process:

$$W = 0,5 f^4 Z^4 m^9 \text{ sec}^{-1},$$

where  $m = 5 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^{-1}$  (using natural unit system). Let us take e. g. xenon. Then  $Z = 54$ , and consequently  $W = 6 \cdot 10^{-8} \text{ sec}^{-1}$ . The observation of decay is imaginable either in a xenon-filled chamber, or with an arrangement similar to the REINES-COWAN experiment [5], but the separation from background noise would be very difficult. (The identification of  $\bar{\nu}$  arising from  $\mu^-$ -decay, with an antineutrino of  $\beta^-$ -decay, although it is less doubtful, could be done easier by means of positrons which arise in the process  $\bar{\nu} + p \rightarrow$



$\rightarrow n + e^+$ .) A significant advantage of the third method proposed is that there is no need for muons of high energy. At low energy one can hope for an improvement in the intensity of the muons.

The author is indebted to Dr. G. MARX for useful discussions and valuable remarks.

#### REFERENCES

1. J. KAWAKAMI, *Progr. Theor. Phys.*, **19**, 459, 1958.
2. G. MARX, *Nucl. Phys.*, **9**, 337, 1958; **10**, 468, 1959.
3. E. J. KONOPINSKI and H. M. MAHMOUD, *Phys. Rev.*, **92**, 1045, 1953; G. MARX, *Acta Phys. Hung.*, **3**, 55, 1953; J. B. ZELDOVICH, *Doklady AN. SSSR.*, **91**, 1317, 1953.
4. H. UMEZAWA and A. VISCONTI, *Nucl. Phys.*, **4**, 224, 1957.
5. F. REINES and A. COWAN, *Nature*, **178**, 446, 1956.

## THE INFLUENCE OF EXCITATION CONDITIONS ON THE DEAD VOLTAGE OF PHOSPHORS

By

GY. GERGELY

RESEARCH INSTITUTE FOR TELECOMMUNICATION, BUDAPEST

(Received 6. VI. 1960)

In some previous papers [1—3] the cathodoluminescence efficiency and the voltage dependence of brightness of thin phosphor layers was studied. As it was described, the brightness  $L_V$  versus accelerating voltage  $V_0$  curves show a low voltage tail below 3—5 kV and for higher voltages they exhibit a strictly linear relationship. Fig. 1 shows some typical  $L_V$  versus  $V_0$  curves, characteristic for various types of phosphors and scintillator crystals.

The intersection of the linear section with the horizontal  $V_0$  axis is called the dead voltage  $V_d$  [4].  $V_d$  is a characteristic value for each phosphor sample, it varied between 1—3,3 kV for the luminescent microcrystals studied.

In a previous paper [3] the effects of artificial surface films, surface deterioration and chemical surface treatments on the dead voltage were discussed. In this paper some experiments dealing with the influence of excitation conditions on the  $L_V$  curves and  $V_d$  are described.

The experiments were carried out with a demountable cathode ray tube described in paper [1]. Only some technical details shall be mentioned here: to prevent condensation of vapours on the phosphor layer, a liquid air cold trap was used in the vacuum system [5]. The  $L_V$  curves were determined by a photoelectric cell coupled with a D. C. galvanometer, thus the average number of photons emitted/unit time was detected. The phosphor layers were settled without any binder [3].

The experiments are summarized in the following:

1) Only a slight difference was found between the  $L_V$  curves resp.  $V_d$  (50—80 V) for defocused D. C. resp. focused scanning electron beam (raster) excitation, using the same average (moderate,  $< 2 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ ) current density. The raster excitation is equivalent with high intensity subsequent pulsed excitation of the single microcrystals.

2) A small variation of  $V_d$  with  $i_0$  current density ( $\sim 100$  V for 1—4  $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ ) was observed.  $V_d$  is slightly increasing with  $i_0$ . This can be explained presumably by the voltage drop on the phosphor layer [6].



3) The dead voltage does not vary with the particle size of the phosphor. Several fractions of  $Zn_2SiO_4-Mn$ ,  $ZnS-Ag-Cl$ ,  $ZnCdS-Ag$  phosphors were prepared by the settling process and the  $L_V$  curves of the fractions were determined.

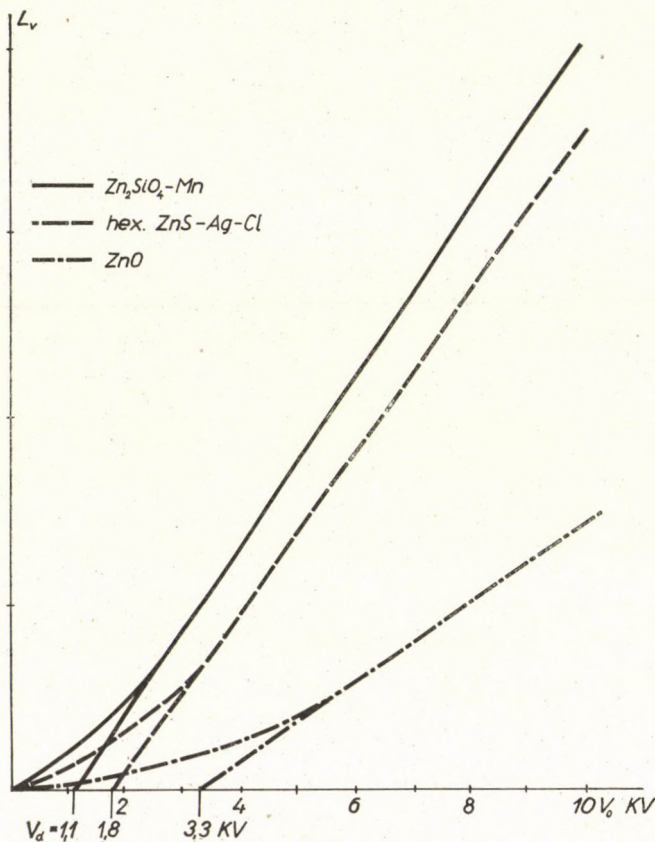


Fig. 1

4)  $V_d$  is not dependent on the thickness of the phosphor layer, the same value was found on the excited resp. glass side of the layers, proving that  $L_V$  and  $V_d$  are not influenced by diffuse optical effects.

5) It might be supposed that the dead voltage is caused possibly by charging up of the phosphor layer (sticking potential). This assumption was disproved by two experiments:

a) A fine grid (electroformed mesh) was applied in immediate contact with the layers (experiment proposed by Prof. KALLMANN).

b) Layers were settled on glass plates and plates provided with a conducting  $SnO_2$  coating. No effects were found in experiments 5a resp. 5b.

6) The shape of the  $L_V$  curve and the magnitude of  $V_d$  are identical for two separate emission bands of the phosphor samples. This was observed for the blue resp. green emission band of several hex.  $ZnS-10^{-4}Ag-xCu-Cl$  samples ( $x = 10^{-8}-10^{-4}$ ).

7) It may be assumed that the dead voltage is an effect caused by traps (proposed explanation of RUPPEL). To check the validity of this supposition, the influences of simultaneous 3650 Å U. V. resp.  $> 0,8\mu$  I. R. irradiation and cathode ray excitation were studied. As it was found by some authors, the effect of traps can be eliminated in some crystal counters by applying U. V. resp. I. R. radiation [7, 8].

a) The application of strong U. V. irradiation besides C. R. excitation caused the superposition of steady state photo- resp. cathodoluminescence emission. This appeared in the constant vertical shift of the  $L_V$  curves.

b) The application of I. R. irradiation caused a nearly constant decrease of brightness (quenching), not varying with  $V_0$ . A slight horizontal shift of the  $L_V$  curves was observed, but the increment of  $V_d$  was negligible (80–120 V).

Summarizing the results of our experiments, the form of the  $L_V$  curve and the magnitude of  $V_d$  can be only slightly influenced by conditions of excitation. The experiments made to suppress the dead voltage by chemical [3] or physical manipulations were not successful. The  $L_V$  curve resp.  $V_d$  are characteristic for the phosphor material.

A detailed theoretical discussion of the  $L_V$  curve will be given in another paper [9].

The author wishes to express his sincere thanks to Professor Dr. H. KALLMANN and to Dr. W. RUPPEL for valuable discussions.

#### REFERENCES

1. GY. GERGELY, I. HANGOS, K. TÓTH, J. ÁDÁM and GY. POZSGAY, *Z. Phys. Chem.*, **210**, 10, 1959.
2. GY. GERGELY, *Z. Phys. Chem.*, **211**, 274, 1959.
3. GY. GERGELY and I. HANGOS, Symposium on Solid State Physics in Electronics and Telecommunications, Bruxelles, 1958, Academic Press, London, 1960. Vol. 4. p. 724.
4. P. H. DOWLING and J. R. SEWELL, *J. El. Chem. Soc.*, **100**, 22, 1953.
5. D. HAHN and K. LERTES, *Z. Phys.*, **156**, 425, 1959.
6. L. R. KOLLER, *J. El. Chem. Soc.*, **103**, 214, 1956.
7. A. G. CHYNOWETH, *Phys. Rev.*, **83**, 254, 1951.
8. R. RAMANNA and V. P. DUGGAL, *Phys. Rev.*, **84**, 1251, 1951.
9. GY. GERGELY *Acta Phys. Hung.* **12**, 221, 1961.





# ABSORPTION OF HIGH ENERGY NEUTRINOS

By

G. MARX and M. ELKISHEM\*

INSTITUTE FOR THEORETICAL PHYSICS, ROLAND EÖTVÖS UNIVERSITY, BUDAPEST

(Received 19. VIII. 1960)

Among the well-known interactions of elementary particles (choosing  $\hbar = c = 1$ ) only the coupling constant of the weak interaction possesses any physical dimension. This fact gives rise to different problems, among others to problems connected with the renormalizability of the interaction. Therefore many authors have supposed that instead of the phenomenological direct four fermion interaction

$$H(x) = f \sqrt{8} \bar{\psi}_1 \gamma_\mu \frac{1 + \gamma_5}{2} \psi_2 \cdot \bar{\psi}_3 \gamma_\mu \frac{1 + \gamma_5}{2} \psi_4 + \text{herm. conj.} \quad (1)$$

an indirect coupling does exist between the two fermion pairs in which the interaction takes place via an intermediate vector boson having the interaction Hamiltonian

$$H(x) = g \bar{\psi}_1 \gamma_\mu \frac{1 + \gamma_5}{2} \psi_2 \varphi_\mu + g \bar{\psi}_3 \gamma_\mu \frac{1 + \gamma_5}{2} \psi_4 \varphi_\mu + \text{herm. conj.} \quad (2)$$

The consequences of (1) and (2) are the same supposing that the boson mass is large, i. e. the energies of the interacting particles are low compared to  $\hbar c \mu$ . ( $\mu^{-1}$  is the Compton wave length of the intermediate boson). The  $S$  matrix element of the four fermion interaction following from (2) (Fig. 1) is

$$S_{if} = \frac{-ig^2}{\hbar c \mu^2} \frac{(2\pi)^4}{V^2} \bar{u}_1 \gamma_\mu \frac{1 + \gamma_5}{2} u_2 \frac{1}{1 + \left(\frac{k_3 - k_4}{\mu}\right)^2} \bar{u}_3 \gamma_\mu \frac{1 + \gamma_5}{2} u_4 \cdot \delta(k_1 - k_2 + k_3 - k_4), \quad (3)$$

which tends to the corresponding matrix element following from (1) if the momentum transfer  $k_3 - k_4$  is small compared to  $\mu$  and

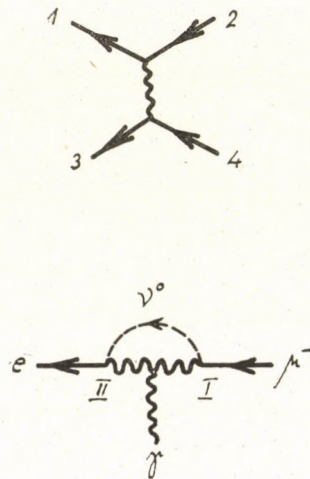
$$g^2 = f \mu^2 \sqrt{8}. \quad (4)$$

\*On leave of absence from the Physical Institute of Kairo University.



Since until now the weak interactions have been studied only in the low energy region (almost solely in decay processes) experimental facts neither disprove nor confirm the form (2). Even the highest energy decay  $K \rightarrow \mu + \nu$  can be explained supposing that the intermediate boson mass is higher than half nucleon mass.

The indirect consequences of the interactions (1) and (2) in certain cases are different even for lower energies. Among these one has to mention the quick  $\mu \rightarrow e + \gamma$  decay following from the interaction (2) (Fig. 2) contradicting the experiments. This problem, however, can be solved in the well-



Figs. 1-2

known way by supposing two types of neutrinos, one of them ( $\nu^0$ ) connected with the electron term of the weak current, the other ( $\eta^0$ ) with the muon term.\*\* (In this case the neutrino emitted in the I-st vertex cannot be absorbed in the II-nd one.) If  $\nu^0 \neq \eta^0$  beside baryon conservation the lepton number ( $e^-, \nu^0, -e^+, -\bar{\nu}^0$ ) and separately also the muon number ( $\mu^-, \eta^0, -\mu^+, -\bar{\eta}^0$ ) is conserved exactly [3], thus excluding in a natural way the unobserved processes

$\mu \rightarrow e^- + \gamma$ ,  $\mu^- \rightarrow e^- + e^- + e^+$ ,  $\mu^- + p^+ \rightarrow p^+ + e^-$ ,  $K^+ \rightarrow \pi^+ + e^- + \mu^+$   
etc.

\*\*In connection with the hypothesis of two types of neutrinos KAWAKAMI and SCHWINGER [1] have supposed that  $\nu^0$  and  $\eta^0$  possess different helicity. According to GELL-MAN, however, it is more convenient to assume that antifermions are particles occurring in weak interactions with positive helicity, i. e. the weak current contains the expression  $1 + \gamma_5$ . (This definition is equally well applicable to baryons and leptons.)

We have seen that the hypothesis of the intermediate boson field in weak interactions is connected with the hypothesis of two separate types of neutrinos and the decision in both questions can be expected mainly from high energy processes, where in (3)  $(k_3 - k_4)^2 / \mu^2$  cannot be neglected against 1. Therefore the neutrino absorption experiments which should be carried out with high energy accelerators at several GeV are extremely important [4]. Let us study the process  $\pi^- \rightarrow \mu^- + \bar{\eta}^0, \bar{\eta}^0 + p^+ \rightarrow n + l^+$  in the high energy region taking into account also the recoil effects.\*\*\* ( $l^+$  is a positive lepton:  $e^+$  or  $\mu^+$ ).

In the lowest order approximation of the perturbation theory the absorption cross section for antineutrinos according to (2) in the laboratory system is

$$\sigma(E) = 2\sigma_0 \int_0^L \left( \frac{1 - K/E}{1 + bK} \right)^2 dK = \sigma_0 \left[ \frac{2L}{b^2 E^2} \left( 1 + \frac{(1 + bE)^2}{1 + bL} \right) - 4 \frac{1 + bE}{b^3 E^2} \log(1 + bL) \right], \tag{5}$$

where

$$\sigma_0 = \frac{f^2 M^2}{2\pi \hbar^2 c^2} = \frac{M^2}{2\pi} I_0^2 = \frac{M^2}{16 \pi \mu^4} \left( \frac{g^2}{\hbar c} \right)^2 = 1,6 \cdot 10^{-38} \text{ cm}^2 \tag{6}$$

$$\left( I_0 = \sqrt{\frac{f}{\hbar c}} = 0,8 \cdot 10^{-16} \text{ cm} \right).$$

Here  $E$  is the energy of the incident neutrino,  $K$  the kinetic energy of the recoil neutron, and

$$L = \frac{E}{1 + \frac{1}{2E}} \tag{7}$$

is the maximum value of its energy, all measured in nucleon mass units.  $M^{-1}$  is the Compton wave length of the nucleon and  $b = 2 M^2 / \mu^2$ . The cross section equals zero for  $E = 0$  and for  $E \rightarrow \infty$  tends to the finite value

$$\sigma(\infty) = \sigma_0 \frac{\mu^2}{M^2}. \tag{8}$$

\*\*\*We neglect the mass difference  $n-p$  and the lepton mass. About pionic corrections see later.



The corresponding result following from (1) (which can be obtained from (5) in the limiting case  $b = 0$ ,  $\mu = \infty$ ) is quite different:

$$\sigma(E) = \frac{2}{3} \sigma_0 E \left[ \left( \frac{L}{E} \right)^3 - 3 \left( \frac{L}{E} \right)^2 + 3 \left( \frac{L}{E} \right) \right]. \quad (9)$$

This starts from  $\sigma(0) = 0$  like (5) for  $E$  small, but it is infinite for  $E \rightarrow \infty$ , since the bracketed expression tends to 1.

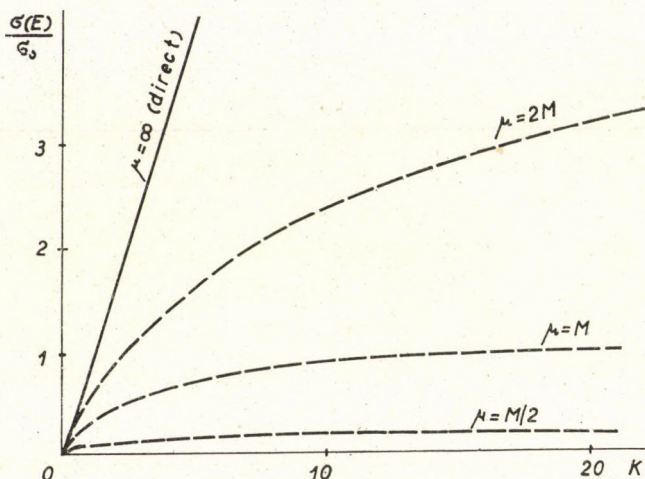


Fig. 3

All this would be true if there were no strong interactions. The pionic structure of the target nucleon produces a cut off in the  $\bar{\eta}^0 + p^+ \rightarrow n + l^+$  cross section at  $L_{\max} = 0,3$  (i. e. at  $0,8 \cdot 10^{-13}$  cm) which gives from (9)  $\sigma(\infty) = 2 L_{\max} \sigma_0 < 10^{-38}$  cm<sup>2</sup> also in the case of the *direct* four fermion interaction. This makes the effect of the intermediate boson with mass  $\mu \gtrsim M$  unobservable.\*\*\*\*

There remains the possibility to use a target which shows no strong interactions, i. e. electrons. The process  $\bar{\eta}^0 + e^- \rightarrow \mu^- + \nu^0$  ( $\eta^0$  is the neutrino

\*\*\*\*The matrix element  $\langle n | \bar{\psi}_n \gamma_\mu \frac{1 + \gamma_5}{2} \psi_p | p \rangle$  will be cut off at  $L_{\max}$  as a result of the pionic terms in the eigenfunctions of the physical nucleons. At high energy, however, the inelastic absorption matrix element  $\langle N, \pi | \bar{\psi}_n \gamma_\mu \frac{1 + \gamma_5}{3} \psi_p | N \rangle$  may give an increasing total cross section. This makes the effect of the intermediate boson perhaps detectable in the inelastic reactions  $\bar{\eta} + \text{nucleon} \rightarrow \mu^- + \text{nucleon} + \text{pions}$ .

coming from  $\pi^+$  decay) is allowed under all circumstances, its cross section is\*\*\*\*\*

$$\begin{aligned} \sigma(E) &= \\ &= \sigma_0 \frac{\mu^2}{M^2} \frac{E^2 - (m_\mu^2 m_e^{-1} - m_e) E + (m_\mu^2 m_e^{-1} - m_e)/4}{E^2 + \frac{1}{2} (\mu^2 m_e^{-1} - m^2 m_e^{-1} + 2m_e - m_e m_\mu^2 \mu^{-2}) E + (\mu - m_\mu^2 \mu^{-1})^2} \end{aligned} \tag{10}$$

( $m_e$  and  $m_\mu$  are the electron and muon masses,  $E$  the incoming neutrino energy, all measured in  $\text{cm}^{-1}$  units.) For very high energies this gives again the constant value (8) depending on the mass of the intermediate boson. In the limit  $\mu = \infty$  (no intermediate boson) the energy dependence is quite different:

$$\sigma(E) = 2\sigma_0 \left(\frac{m_e}{M}\right) \left(\frac{E}{M}\right) \left[ \frac{\left(1 - \frac{m_\mu^2}{2m_e E} + \frac{m_e}{2E}\right)^2}{1 + \frac{m_e}{2E}} \right], \tag{11}$$

which is a linearly increasing function of the neutrino energy. In the high energy limit the ratio of (9) and (11) is  $3m_e : M = 1:632$ .

The reaction  $\bar{\eta} + e^- \rightarrow \mu^- + \bar{\nu}$  (and  $\bar{\eta} + e^- \rightarrow e^- + \bar{\eta}$ \*\*\*\*\*) is allowed for antineutrinos coming from  $\pi^-$  decay only if  $\eta = \nu$ . This possibility is, however, excluded in the intermediate boson theory as a consequence of the slow  $\mu \rightarrow e + \gamma$  decay. In the case of the direct four fermion interaction the asymptotic behaviour of the cross section is the same as for neutrinos, apart from a factor 3.

Thus if it is allowed to neglect the higher corrections of the perturbation theory also in the energy region 10 GeV–100 GeV we can conclude:

(i) Supposing two types of neutrinos (necessary for the intermediate boson theory) the absorption processes

$$\bar{\eta} + p^+ \rightarrow n + e^+, \quad \bar{\eta} + e^- \rightarrow e^- + \bar{\eta}, \text{*****} \quad \bar{\eta} e^- \rightarrow \mu^- + \bar{\nu}$$

with antineutrinos of the  $\pi^-$  decay and the processes

$$\eta + n \rightarrow p^+ + e^-, \quad \eta + e^- \rightarrow e^- + \eta \text{*****}$$

with neutrinos of the  $\pi^+$  decay are strictly forbidden.

\*\*\*\*\*The threshold energy of this reaction is rather high (about  $E = m_\mu^2/2m_e = 10\text{GeV}$ ).

\*\*\*\*\*This process would be possible only in the second order approximation of the perturbation theory.



(ii) Supposing a direct interaction of weak currents the neutrino absorption cross section of nucleons gives a constant value at about  $10^{-38}$  cm<sup>2</sup> as a consequence of the pionic structure of the nucleon, but the absorption cross section of electrons is monotonic increasing from  $10^{-40}$  cm<sup>2</sup> to  $10^{-39}$  cm<sup>2</sup> in this energy region.

(iii) Supposing, alternatively, an intermediate vector boson, the cross section for the allowed process  $\eta + e^- \rightarrow \mu^- + \nu$  tends to a constant value as  $E \rightarrow \infty$ . This value is proportional to the square of the boson mass.

The detection of the small neutrino absorption cross section of the electron and the distinction from the reaction  $\eta + n \rightarrow p^+ + \mu^-$  is naturally a difficult task, excepting the highest energies. The use of a hydrogen target (containing no neutrons) seems to be the best possibility.

The authors are indebted to Mr. G. DOMOKOS, Mr. F. KÁROLYHÁZY, Mr. K. L. NAGY and Mrs. J. NÉMETH for interesting discussions and other valuable assistance.

#### REFERENCES

1. J. KAWAKAMI, *Progr. Theor. Phys.*, **19**, 459, 1958.  
J. SCHWINGER, *Ann. of Physics*, **2**, 407, 1957.
2. R. P. FEYNMANN — M. GELL-MANN, *Phys. Rev.*, **109**, 19 1958.
3. G. MARX, *Nucl. Phys.*, **10**, 468, 1959.
4. N. CABIBBO—R. GATTO, *Nuovo Cim.*, **15**, 304, 1960.  
T. D. JEE—C. N. YANG, *Phys. Rev. Lett.*, **4**, 307, 1960.  
Y. YAMAGUCHI, *Progr. Theor. Phys.*, **23**, 1117, 1960.  
On High Energy Neutrino Physics, JINR-preprint, Dubna, 1960.

# THE CONNECTION OF THE ABSORPTION AND FLUORESCENCE SPECTRA OF SOLUTIONS

(Preliminary Report)

By

I. KETSKEMÉTY, J. DOMBI and R. HORVAI

INSTITUTE OF EXPERIMENTAL PHYSICS, UNIVERSITY OF SZEGED, SZEGED

(Received 22. IX. 1960)

§1. A rather simple expression connecting the absorption spectrum  $\varepsilon(\nu)$  and emission energy spectrum  $f_e(\nu)$  of fluorescent solutions was obtained by B. I. STEPANOV [1]. According to his considerations, if a) the distribution of the fluorescent molecules among the sublevels of the excited state is in agreement with the equilibrium distribution function corresponding to the absolute temperature  $T$ , and b) the optical transitions between the sublevels of the ground state may be neglected, then

$$f_e(\nu)/\varepsilon(\nu) = d \cdot \nu^3 \exp[-h\nu/kT], \quad (1)$$

where  $d$  is an empirical constant independent of  $\nu$ ,  $h$  and  $k$  are Planck's and Boltzmann's constants.

STEPANOV considered eqn. (1) to be of universal validity and the experimental results published hitherto, at least qualitatively, support this formula [2]. However, just STEPANOV himself suggests that the drop of the quantum yield function with decreasing  $\nu$  is due to the nonfulfilment of condition b) [3]. Accordingly, the conditions of validity of the formula (1) were studied more closely.

§2. From our theoretical treatment, discussed in detail elsewhere [4], the validity of the relation

$$f_e(\nu)/\varepsilon(\nu) = d' \cdot \eta(\nu)n^2(\nu)\nu^3 \exp[-h\nu/kT], \quad (2)$$

instead of eqn. (1) may be expected, where  $n(\nu)$  is the refractive index of the solution and  $d'$  a constant independent of  $\nu$ . In the spectral region, where  $\eta(\nu) \equiv \text{const}$  and  $n(\nu) \equiv \text{const}$ , eqn. (2) is reduced to eqn. (1). STEPANOV's conditions a) and b) cannot, however, be considered sufficient for the validity of eqns. (1) and (2), because e. g. in the case of mixed solutions and in that of some other systems too, despite of the fulfilment of a) and b), the shape of the absorption spectrum remains unchanged on altering the concentration, whereas the emission spectrum changes considerably [5]. The derivation of eqn. (2) was based on the following fairly evident conditions:



(i) The solution contains but one kind of fluorescent substance, (ii) the light absorption of the solution obeys Lambert's law and (iii) the absorption in the spectrum region examined is completely due to the molecules of the solute, (iv) the fluorescent molecules of the solution are in the excited state in the sense of STEPANOV's term scheme [1], (v) the forced emission of the solute may be neglected, (vi) only direct transitions of the molecules from the ground state to the excited one result in the excitation of the solution, (vii) the transitions of the fluorescence emission are due only to the spontaneous emission transitions from the excited state to the ground state, (viii) in the case of stationary excitation the molecules in the excited state are distributed among the sublevels according to the equilibrium distribution function corresponding to the temperature  $T$ .

If in addition to conditions (i) — (viii) a further condition is valid too: (ix) the shape of the energy distribution function of the molecules is the same both in the exciting state and in the ground state, besides eqn. (2) also NEPORENT's formula [6] modified by us holds:

$$[\eta_{\max}^2 f_q(\nu)/\tau]/[(8\pi n^2/c^2) \nu^2 \eta(\nu) 2,3026 \varepsilon(\nu)/L \cdot 10^{-3}] = \exp[-h(\nu - \nu_e)/kT], \quad (3)$$

where  $f_q(\nu)$  ( $\sim f_e(\nu)/\nu$ ) is the normalized quantum spectrum of fluorescence,  $c$  the velocity of light,  $\tau$  the experimentally measured decay-time,  $L$  Loschmidt's constant,  $\varepsilon(\nu)$  the molar decadic extinction coefficient and  $\nu_e$  the frequency of the pure electronic transition. On substituting  $n = 1$ ,  $\eta(\nu) \equiv \eta_{\max}$  eqn. (3) is

Table I

No.	Fluorescent substance and conc.	Solvent	Exciting wave length	$T^*$ K°
1	Fluorescein $5 \cdot 10^{-4}$ mol/l	H <sub>2</sub> O + 0,03 gr/gr	436 m $\mu$	296
2	„	„	460 m $\mu$	297
3	Eosin $1 \cdot 10^{-5}$ mol/l	80 vol.% C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OH + 20 vol.% H <sub>2</sub> O + $5 \cdot 10^{-3}$ mol/l NaOH	436 m $\mu$	367
4	„	„	546 m $\mu$	318
5	Rhodamin B $2 \cdot 10^{-5}$ mol/l	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> -OH + $3 \cdot 10^{-3}$ mol/l HCl	546 m $\mu$	316
6	„	„	578 m $\mu$	295
7	Trypaflavin $3 \cdot 10^{-4}$ mol/l	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OH	436 m $\mu$	321

reduced to NEPARENT's original formula, but on the other hand, (ix) is a necessary condition of eqn. (3) and thus the validity of this equation may only be expected in limiting cases, i. e. if the mirror-symmetry is fulfilled.

§3. In order to check the validity of eqn. (2) absorption and emission spectrophotometric investigations were carried out with several solutions and exciting wave lengths as shown in Table I. The measurements were performed using the method described in [4], however, to yield monochromatic exciting light in the anti-Stokes range a double monochromator was used.

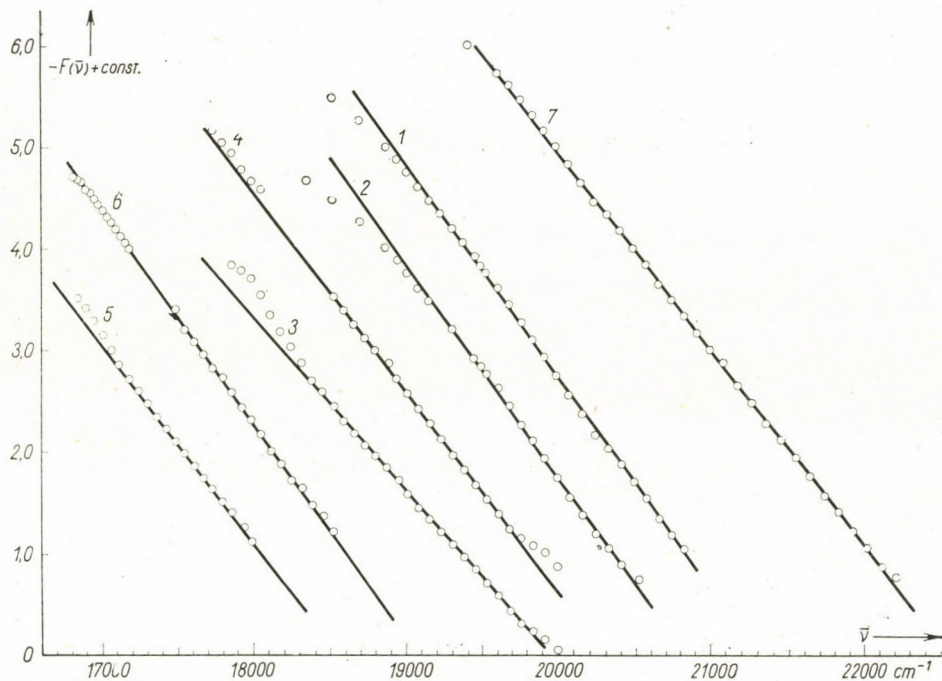


Fig. 1

The true fluorescence spectra were determined by taking the re-absorption into consideration and eliminating the effect of the secondary fluorescence [7]. In Fig. 1  $-F(\bar{\nu}) = \lg f_q(\bar{\nu}) - \lg \varepsilon(\bar{\nu}) - 3 \lg \bar{\nu}$  is plotted as a function of the wave number  $\bar{\nu}$  in the case 1-7 (see Table I). If eqn. (1) is fulfilled, the relation  $-F(\bar{\nu}) = h\bar{\nu}c/2,3026 kT + \text{const}$  ought to be valid. In all cases  $F(\bar{\nu})$  proved to be linear in fairly broad spectrum ranges, moreover the temperatures  $T^*$  calculated from the slope of the straight section of diagrams 1, 2 and 6 are in good agreement with the absolute temperature  $T = 298 \pm 2^\circ\text{K}$  of the solutions. The temperatures  $T^*$  corresponding to the other diagrams show an appreciable deviation from  $T$ , which may be explained, according to ALENCEV, by the nonfulfilment of condition (viii), as owing to the relatively high



frequency of the exciting light compared to  $\nu_e$ , the excited molecules are "hotter" than the solution itself. At values  $\bar{\nu}$  smaller than the wave numbers corresponding to the maximum of the fluorescence spectrum the linearity of function  $F(\bar{\nu})$  gradually ceases. This deviation is to be seen on some of the diagrams of Fig. 1, but on Fig. 2 it is still more remarkable. On this figure in addition to the absorption spectrum  $\varepsilon(\lambda)$  and the fluorescence spectrum  $f_q(\lambda)$ , plotted in arbitrary units, the "temperature radiation spectrum"  $W_q^T(\lambda)$

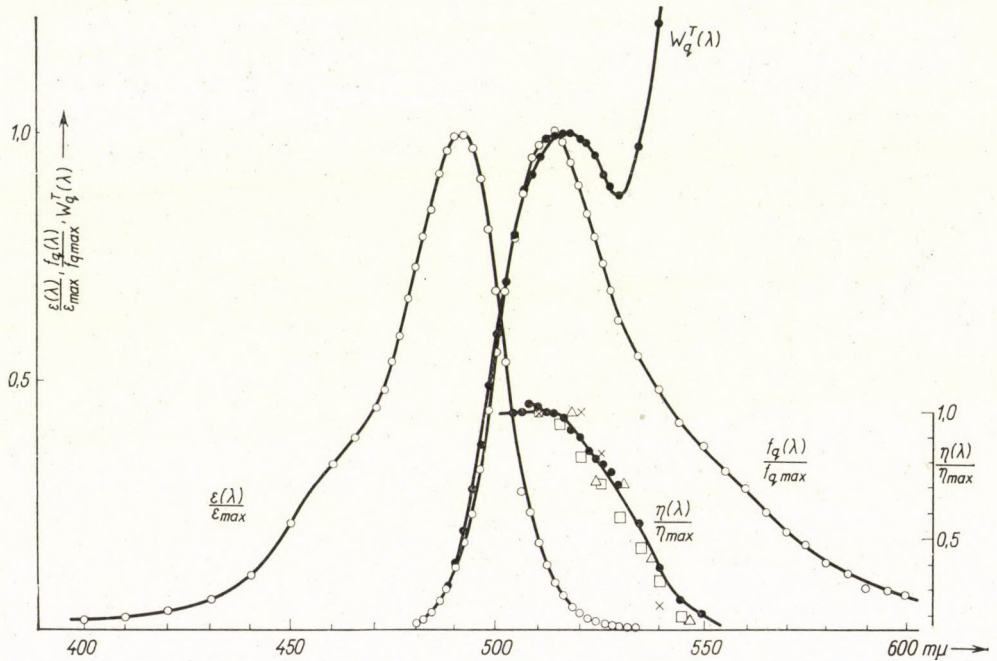


Fig. 2. Relative yields measured by VAVILOV  $\Delta$ , JABLONSKI  $\times$ , TUMERMANN  $\square$  [8] and calculated by the authors

of our fluorescein solution in suitable units is also drawn. According to Kirchhoff's law the spectrum  $W_q^T(\lambda)$  can be expressed as

$$W_q^T(\lambda) = d''\varepsilon(\lambda)\lambda^{-4} \exp[-hc/kT\lambda]; \quad (4)$$

$d''$  is a constant independent of  $\lambda$ . On the basis of eqn. (2) the shape of  $f_q(\lambda)$  is not identical with that of  $W_q^T(\lambda)$ , but for their ratio holds  $\eta(\lambda) = \text{const } f_q(\lambda)/W_q^T(\lambda)$ , and as it can be seen in Fig. 2, the shape of the yield function  $\eta(\lambda)/\eta_{\text{max}}$  calculated in this manner shows good agreement with the experimental values. — Hence our expression (2) is well supported by the experimental results.

The authors are indebted to Prof. A. BUDÓ, Director of the Institute, for his continuous interest in this work and his helpful suggestions.

## REFERENCES

1. Б. И. Степанов, ДАН СССР, **112**, 839, 1957.
2. Б. И. Степанов, Изв. АН СССР, Сер. физ., **22**, 1367, 1958.
3. Б. И. Степанов, Изв. АН СССР, Сер. физ., **20**, 493, 1956.
4. I. KETSKEMÉTY, J. DOMBI and R. HORVAI, to be published.
5. I. KETSKEMÉTY, Acta Phys. Hung., **10**, 429, 1959.
6. Б. С. Непорент, ДАН СССР, **119**, 682, 1958.
7. A. BUDÓ and I. KETSKEMÉTY, Acta Phys. Hung., **7**, 207, 1957;  
J. DOMBI and R. HORVAI, Acta Phys. et Chem. Szeged, **2**, 9, 1956;  
A. BUDÓ, J. DOMBI and R. HORVAI, Acta Phys. et Chem. Szeged, **3**, 3, 1957.
8. Л. А. Тумерман, Труды Физ. Инст. АН СССР, **1**, 77, 1938;  
A. JABLONSKI, Zs. f. Phys., **94**, 460, 1935;  
S. I. WAWILOW, Zs. f. Phys., **42**, 311, 1927.





**Künstliche Erdsatelliten.** 2. Sonderband der Fortschritte der Physik. Übersetzung aus dem Russischen. Mit 146 Bildern und 31 Tabellen. Akademie Verlag, Berlin 1959. Preis broschiert DM 38.—

Dieser Band enthält 21 Arbeiten, welche die mit Erdsatelliten zusammenhängenden Probleme zwar nicht umfassend behandeln, aber eine allgemeine Vorstellung von der Bewegung der Erdsatelliten und von den mit ihrer Hilfe durchführbaren wissenschaftlichen Untersuchungen vermitteln. Die Autoren sind führende sowjetische Techniker, Physiker und Astronomen, die alle einen wesentlichen Beitrag zu den epochemachenden Erfolgen der sowjetischen Wissenschaft auf dem Gebiet der Raumfahrtforschung geliefert haben.

In der ersten Arbeit (S. 1—33) behandeln D. E. OCHOCIMSKIJ und T. M. ENEEV das Problem der Hinaufführung künstlicher Erdsatelliten auf ihre Bahn. Dabei wurde angenommen, dass der Antrieb durch Beschleunigung mittels ein- oder mehrstufiger Raketen erfolgt. Es wird untersucht, wie sich die Schubrichtung der Raketentriebe zeitlich ändern muss, damit die Hinaufführung eines Satelliten auf eine vorgegebene Bahn bei minimalem Brennstoffverbrauch vor sich geht. Ferner wird das rationellste Brennstoffverbrauchsprogramm gesucht. Diese Probleme wurden unter verschiedenen vereinfachenden Annahmen gelöst.

Dieselben Autoren und G. P. TARATYNOVA geben in der folgenden Arbeit (S. 34—54) zum erstenmal eine vollständige Lösung des Problems der Lebensdauer von künstlichen Erdsatelliten, die sich auf elliptischen Bahnen bewegen. Eine hinreichend strenge Lösung lag bisher nur für Kreisbahnen vor. Die in § 4 dieser Arbeit gegebenen numerischen Rechenresultate beruhen auf ganz bestimmten Annahmen über die Struktur der höheren atmosphärischen Schichten und bedürfen nach den neueren Ergebnissen einer Revision.

Die zwei folgenden Aufsätze von G. P. TARATYNOVA (S. 55—64) bzw. I. M. JACUNSKIJ (S. 65—79) behandeln die Bewegung eines künstlichen Erdsatelliten unter Berücksichtigung des Luftwiderstandes und des nicht-zentralen Schwerfeldes der Erde.

In der zweiten Arbeit wird auch die Anomalie des Schwerfeldes in Betracht gezogen. Die in diesen Arbeiten entwickelten Formeln dienten später bei den langfristigen Bahnmessungen der Sputniks als Grundlagen zur Verbesserung der Daten über die Dichte der Luft in Höhen zwischen 150 und 300 km und über die Abplattung des Erdsphäroids.

Eine längere Arbeit von V. A. EGOROV (S. 80—131) berichtet über die in den Jahren 1953—1955 im Mathematischen Institut der Akademie der Wissenschaften der UdSSR durchgeführten systematischen Untersuchungen der Theorie des Fluges zum Mond wie der Form und der Klassifikation der Freiflugbahn, der möglichen Bahnen für das Umfliegen des Mondes und der anschließenden Rückkehr zur Erde, des Problems des Auftreffens auf den Mond, usw. Neben den strengen Lösungen wurden auch Näherungsverfahren behandelt. Am Schluss der Arbeit wurde auf die Möglichkeit ihrer Verallgemeinerung für das Problem des Fluges zu den äusseren Planeten des Sonnensystems hingewiesen.

In einem kurzen Artikel (S. 132—136) weist V. L. GINZBURG auf die höchst verlockende Perspektive der Prüfung der allgemeinen Relativitätstheorie hin, die die Untersuchungen an künstlichen Erdsatelliten eröffnen.

Die Versorgung der wissenschaftlichen Apparaturen und des Telemess-Systems eines künstlichen Erdsatelliten mit elektrischer Energie kann durch mitgeführte Akkumulatoren und galvanische Elemente nur für eine begrenzte Zeit erfolgen. Ein längeres Arbeiten der Geräte ist nur bei Ausnutzung der Sonnenenergie möglich. Zur Umwandlung von Sonnenenergie in elektrische ist die Benutzung photoelektrischer Halbleiterbatterien zu empfehlen. W. S. VAVILOV und seine Mitarbeiter berichten (S. 137—144) über Arbeitsweise, Charakteristiken und Arbeitstemperatur von Siliziumphotoelementen.



Im Zusammenhang mit der Entsendung künstlicher Erdsatelliten eröffneten sich völlig neue Möglichkeiten bei der Untersuchung der Kernkomponente der kosmischen Strahlung. Eine Reihe von Autoren behandeln in den beiden nachfolgenden Aufsätzen (S. 145—179) die Frage, welche Apparaturen in den Erdsatelliten für die Untersuchung der Zusammensetzung der primären kosmischen Strahlung bzw. ihrer Variationen zu empfehlen sind. Höchst interessant sind die Schlussbemerkungen des zweiten Artikels über die neuen Perspektiven der Erforschung der kosmischen Strahlung.

S. L. MANDEL'STAM und A. I. EFREMOV stellen in dem folgenden Bericht (S. 181—199) die neuen Ergebnisse experimenteller und theoretischer Arbeiten über die kurzwellige Sonnenstrahlung zusammen. Dieser Teil der Sonnenstrahlung wird von der Erdatmosphäre stark absorbiert und erreicht daher die Erdoberfläche nicht. Zwar konnte das Sonnenspektrum schon bei Raketenanstiegen bis zum weichen Röntgengebiet hin registriert werden, langzeitige Messungen können nur mit künstlichen Erdsatelliten durchgeführt werden.

Ein anderes Gebiet der Sonnenphysik und zugleich der Geophysik, wo künstliche Erdsatelliten schon eine wesentliche Bereicherung unserer Kenntnisse geliefert haben, ist die Erforschung der Korpuskularstrahlung der Sonne. Darüber berichten V. I. KRASOVSKIJ und Mitarbeiter (S. 200—209). Dann folgen eine Reihe von Aufsätzen über Untersuchungen der Atmosphäre in grossen Höhen mittels Raketen. B. A. MIRTOV behandelt die fundamentalste Frage: die Bestimmung der Gaszusammensetzung der oberen Atmosphäre (S. 211—228.). In einem weiteren Artikel (S. 260—273) referiert er über die Ionenzusammensetzung ionisierter Schichten der Atmosphäre. Dann behandeln zwei Artikel von V. V. MICHNEVIĆ und Mitarbeitern die Druck- und Dichtemessungen in der höheren Atmosphäre.

In jedem dieser Aufsätze liegt das Hauptgewicht auf der methodischen Seite des Problems, ebenso wie in den darauffolgenden Arbeiten: »Untersuchung der Ionenzusammensetzung ionisierter Schichten der Atmosphäre« von B. A. MIRTOV und V. G. ISTOMIN (S. 260—273), »Messung der Konzentration positiver Ionen längs der Bahn eines künstlichen Erdsatelliten« von K. P. GRINGAUZ und M. CH. ZELIKMAN (S. 274—289)

und »Über eine Methode zur Untersuchung der Ionosphäre mit Hilfe eines künstlichen Erdsatelliten« von JA. L. AL'PERT (S. 290—300). Wir sehen, dass es zur Durchführung der angegebenen Versuche keiner speziellen technischen Entwicklungen bedarf, sondern die dabei auftretenden Mess- und Konstruktionsaufgaben mit Hilfe überall in der Radiotechnik verwendeter Apparaturen gelöst werden können. Trotzdem sind beliebige Versuche mit Satelliten auch bei grösstmöglicher Einfachheit der Messmethode subtile Untersuchungen.

S. M. POLOSKOV und T. N. NAZAROVA behandeln das Problem, wie die Untersuchung der festen Komponente der interplanetaren Materie zu einer wissenschaftlichen Aufgabe für die Raketenuntersuchungen gemacht werden kann (S. 304—317). I. M. IMJANITOV betrachtet die Besonderheiten bei Messungen elektrischer Felder in den höheren Schichten der Atmosphäre und gibt Wege zum Bau von Apparaturen für die Messungen an (S. 318—335).

Das Programm des Internationalen Geophysikalischen Jahres sieht die Durchführung von geomagnetischen Messungen mit künstlichen Satelliten und Raketen vor, wodurch experimentelle Daten über die räumliche Verteilung des geomagnetischen Feldes in grossen Höhen ermittelt werden. In einem Artikel betrachten N. V. PUŠKOV und S. S. DOLGINOV einige geophysikalische und technische Aspekte derartiger Messungen. (S. 336—348).

In dem Schlussartikel schreiben I. S. ŠKLOVSKIJ und P. V. ŠČEGLOV über optische Beobachtungen künstlicher Erdsatelliten. Das Ziel solcher Beobachtungen ist, die räumlichen Koordinaten der Satelliten zu verschiedenen Zeitpunkten durch Beobachtungen von der Erdoberfläche aus zu bestimmen. (S. 349—357). Die Autoren behandeln besonders die Anforderungen, die an das optische System gestellt werden müssen, um die Satelliten photographieren zu können.

Die rasche Entwicklung auf dem Gebiete der Raumfahrtforschung wird es natürlicherweise mit sich bringen, dass manche Teile des Buches bald überholt sein werden. Jedoch wird das Buch infolge der sorgfältigen Auswahl der grundlegenden Fragen noch lange als ein vorzüglicher Ratgeber für Astronomen, Physiker und Geophysiker gelten.

L. DETRE



**Beiträge zur Physik und Chemie des 20. Jahrhunderts.** Herausgegeben von O. R. FRISCH, F. A. PANETH, F. LAVES, P. ROSBAUD. Verlag Friedr. Vieweg & Sohn, Braunschweig, 1959. 285 Seiten.

Das Buch ist drei hervorragenden deutschen Wissenschaftlern anlässlich ihres 80. Geburtstages gewidmet, die zur stürmischen Entwicklung der Physik und besonders der Atomphysik in unserem Jahrhundert ausserordentlich viel beigetragen haben.

Die drei gefeierten Nobel-Preisträger, LISE MEITNER, OTTO HAHN und MAX VON LAUE, haben die Entwicklung der Physik, besonders der Atomphysik, weitgehend beeinflusst und beschleunigt. Die jüngere Generation der Physiker kann diese stürmische Entwicklung der Atomphysik in ihrer Mannigfaltigkeit und Vielseitigkeit kaum durchblicken, und das grosse Verdienst dieser drei Forscher richtig verstehen. Zu einem solchen Verständnis ist aber dieses ausgezeichnete Buch ein sehr guter und vielseitiger Leitfaden.

32 prominente Mitarbeiter haben das Material des Buches zusammengestellt. Es besteht aus 27 unabhängigen Arbeiten. Die verschiedenen Autoren haben ihre Aufgabe in verschiedener Weise aufgefasst. Aus diesem Grunde gewinnt das Buch eine mosaikartige Vielseitigkeit, aus der teilweise die geschichtliche Entwicklung der Atomphysik, teilweise persönliche, menschliche Verbindungen und Beziehungen der Mitarbeiter zu den gefeierten prominenten Forschern, bzw. ihren wissenschaftlichen Schulen und Instituten zu erkennen sind.

Das Buch ist in drei Teile geteilt, jeder Teil ist einem der gefeierten Wissenschaftler gewidmet. Der erste Artikel jedes Teiles enthält Erinnerungen, teilweise geschichtlicher, teilweise persönlicher Natur. Die anderen Beiträge enthalten je nach der Auffassung der Autoren zusammenfassende Referate über einen Teil der Atomphysik, zu dessen Entwicklung der Gefeierte viel beigetragen hat.

Im Rahmen dieser kurzen Buchbesprechung ist es nicht möglich, die einzelnen Beiträge von so vielen prominenten Autoren zu analysieren, oder auch nur alle zu erwähnen. Der Leser muss sich diesbezüglich an das Inhaltsverzeichnis des Buches halten.

Es soll hier nur eine kleine Auswahl besprochen werden.

Unter den Arbeiten, die LISE MEITNER gewidmet sind, gibt S. ROSENBLUM in seinem Artikel (»Spectres Magnétiques des Particules Alpha«) einen Bericht über die historische Entwicklung und den heutigen Stand der Alpha-Spektrometrie, mit manchen persönlichen Erinnerungen gewürzt. W. GENT-

NER stellt in seinem Artikel (»Einiges aus der frühen Geschichte der Gamma-Strahlen«) die Geschichte der Forschung der Gamma-Strahlen dar. C. S. WU zeigt dem Leser in ihrem ausgezeichneten Referat (»History of Beta Decay«) nicht nur die Geschichte der Forschung der Beta-Spektren, zu der Frau Prof. LISE MEITNER persönlich so viel beigetragen hat, sondern auch den neuesten Stand unserer Kenntnisse über die schwachen Wechselwirkungen, die Nichterhaltung des Paritätsgesetzes, die Zweikomponententheorie des Neutrino und die neuesten experimentellen Resultate, die für die Wechselwirkungen bei der Beta-Umwandlung verantwortlich sind.

Von den Arbeiten, die für OTTO HAHN bestimmt sind, macht der Beitrag von K. E. ZIMEN (»Einige Erinnerungen an das Kaiser-Wilhelm-Institut für Chemie«) den Leser mit der Geschichte des HAHNSchen Instituts bekannt. GLENN T. SEABORG (»Early Radiochemical Investigations of Plutonium«) betont den Einfluss des Buches von OTTO HAHN »Applied Radiochemistry« und seiner Gastvorlesungen an der Cornell-Universität in 1933 auf die Entwicklung der radiochemischen Forschung in den Vereinigten Staaten und berichtet über die Geschichte der Entdeckung des Plutoniums.

GEORGE VON HEVESY (»Einige Anwendungen des radioaktiven Eisens«) berichtet über seine Experimente, bei denen radioaktives Eisenisotop ( $Fe^{59}$ ) zur Markierung des Bluthämoglobins verwendet wird. Es ist ihm gelungen, den Eisenumsatz der Blutzirkulation zu verfolgen und bereits innerhalb von ein Paar Stunden zu bestimmen, ob beim untersuchten Patienten die Lebensdauer der roten Blutkörperchen normal oder verkürzt ist.

N. RIEHL (»Untersuchungen über Kristallwachstum und Mischkristallbildung als Anwendungsgebiet für radioaktive Isotope«) berichtet über ein Gebiet, auf dem das HAHNSche Institut bahnbrechende Arbeit geleistet hat.

Die MAX VON LAUE gewidmeten Beiträge sind aus dem Gebiete der Röntgenphysik und Diffraktographie zusammengestellt. Ein kurzer Bericht von W. L. BRAGG gibt nur einen rein geschichtlichen Überblick.

Es folgt eine Anzahl von ausgezeichneten Berichten, die grösstenteils fachlich gefasst sind. Sie bieten dem Leser ein breites Bild über die ungeheure Entwicklung der Röntgendiffraktographie und dadurch unserer



Kenntnisse über die materielle Welt, in der wir leben, eine Entwicklung, die die Entdeckung LAUES nach 1912 hervorgerufen hat. F. LAVES berichtet zum Beispiel über Kristallstruktur und Kristallchemie, A. GUINIER über das Studium der Kristallfehler mittels Röntgenstrahlen, KATHLEEN LONSDALE über die Schwingungen der Atome von Kristallen, G. BORRMANN über Röntgenwellenfelder, W. HOPPE über organische Moleküle, usw.

Abschliessend sei gesagt, dass der Band im allgemeinen der heutigen Generation der aktiven Physiker sehr warm zu empfehlen ist. Das Lesen des Buches ermöglicht es, einerseits einen Einblick in die historische Entwicklung der Korpuskularphysik zu gewinnen, und andererseits zeigt es recht viel von den neuen Richtungen der Atom- und Röntgenforschung.

A. SZALAY

The *Acta Physica* publish papers on physics, in English, German, French and Russian. The *Acta Physica* appear in parts of varying size, making up volumes. Manuscripts should be addressed to:

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

Correspondence with the editors and publishers should be sent to the same address.

The rate of subscription to the *Acta Physica* is 110 forints a volume. Orders may be placed with "Kultura" Foreign Trade Company for Books and Newspapers (Budapest I., Fő u. 32. Account No. 43-790-057-181) or with representatives abroad.

---

Les *Acta Physica* paraissent en français, allemand, anglais et russe et publient des travaux du domaine de la physique.

Les *Acta Physica* sont publiés sous forme de fascicules qui seront réunis en volumes. On est prié d'envoyer les manuscrits destinés à la rédaction à l'adresse suivante:

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

Toute correspondance doit être envoyée à cette même adresse.

Le prix de l'abonnement est de 110 forints par volume.

On peut s'abonner à l'Entreprise du Commerce Extérieur de Livres et Journaux «Kultura» (Budapest I., Fő u. 32. — Compte-courant No. 43-790-057-181) ou à l'étranger chez tous les représentants ou dépositaires.

---

«*Acta Physica*» публикуют трактаты из области физических наук на русском, немецком, английском и французском языках.

«*Acta Physica*» выходят отдельными выпусками разного объема. Несколько выпусков составляют один том.

Предназначенные для публикации рукописи следует направлять по адресу:

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

По этому же адресу направлять всякую корреспонденцию для редакции и администрации.

Подписная цена «*Acta Physica*» — 110 форинтов за том. Заказы принимает предприятие по внешней торговле книг и газет «Kultura» (Budapest I., Fő u. 32. Текущий счет: № 43-790-057-181) или его заграничные представительства и уполномоченные.



## I N D E X

- K. Nagy* : Angular Correlation between Neutrino and Gamma-Quantum in K-Capture II.  
— *К. Надь*: Угловая корреляция нейтрино и гамма-кванта при К-захвате II. 193
- K. Ladányi* : On the Bethe-Salpeter Method in the Thirring Model. — *К. Ладаньи*:  
О методе Бете-Салпетера в модели Тирринга ..... 199
- Л. Пал, Ф. Сабо, З. Дымеши, Л. Бата и Л. Тури*: Исследования гетерогенной под-  
критической системы SR-1. — *L. Pál, F. Szabó, Z. Gyimesi, L. Bata and L. Turi* :  
Investigation of the SR-1 Heterogeneous Subcritical Assembly ..... 205
- Gy. Gergely* : Diffusion Effects in Electron Bombardment Induced Processes I. Cathodolumi-  
nescence. — *Дь. Гергей*: Диффузионные явления при процессах, возбуж-  
денных электронной бомбардировкой I. Катодолуминесценция ..... 221
- Th. Neugebauer* : Über die Interferenz von Photonen. — *Т. Нейгебауер*: Об интерфе-  
ренции между фотонами ..... 241

*Краткие сообщения — Brief Reports — Kurze Mitteilungen*

- P. Vértes* : On the Neutral Decay Products of Muons ..... 249
- Gy. Gergely* : The Influence of Excitation Conditions on the Dead Voltage of Phosphors 253
- G. Marx and M. Elkishem* : Absorption of High Energy Neutrinos ..... 257
- I. Ketskeméty, J. Dombi and R. Horvai* : The Connection of the Absorption and Fluorescence  
Spectra of Solutions ..... 263

*Обзор книг — Book Reviews — Buchbesprechungen*

- L. Detre* : Künstliche Erdsatelliten. 2. Sonderband der Fortschritte der Physik ..... 269
- A. Szalay* : O. R. Frisch, F. A. Paneth, F. Laves, P. Rosbaud: Beiträge zur Physik und  
Chemie des 20. Jahrhunderts ..... 271

# ACTA PHYSICA

## ACADEMIAE SCIENTIARUM HUNGARICAE

ADIUVANTIBUS  
Z. GYULAI, L. JÁNOSSY, I. KOVÁCS, K. NOVOBÁTZKY

REDIGIT  
P. GOMBÁS

TOMUS XII

FASCICULUS 4.



1960

ACTA PHYS. HUNG.



# ACTA PHYSICA

## A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA FIZIKAI KÖZLEMÉNYEI

SZERKESZTŐSÉG ÉS KIADÓHIVATAL: BUDAPEST V., ALKOTMÁNY UTCA 21.

Az *Acta Physica* német, angol, francia és orosz nyelven közöl értekezéseket a fizika tárgyköréből.

Az *Acta Physica* változó terjedelmű füzetekben jelenik meg: több füzet alkot egy kötetet. A közlésre szánt kéziratok a következő címre küldendők:

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

Ugyanerre a címre küldendő minden szerkesztőségi és kiadóhivatali levelezés.

Az *Acta Physica* előfizetési ára kötetenként belföldre 80 forint, külföldre 110 forint. Megrendelhető a belföld számára az Akadémiai Kiadónál (Budapest V., Alkotmány utca 21. Bankszámla 05-915-111-46), a külföld számára pedig a „Kultúra” Könyv- és Hírlap Külkereskedelmi Vállalatnál (Budapest I., Fő u. 32. Bankszámla 43-790-057-181 sz.), vagy annak külföldi képviselőinél és bizományosainál.

---

Die *Acta Physica* veröffentlichen Abhandlungen aus dem Bereiche der Physik in deutscher, englischer, französischer und russischer Sprache.

Die *Acta Physica* erscheinen in Heften wechselnden Umfanges. Mehrere Hefte bilden einen Band.

Die zur Veröffentlichung bestimmten Manuskripte sind an folgende Adresse zu richten:

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

An die gleiche Anschrift ist auch jede für die Redaktion und den Verlag bestimmte Korrespondenz zu senden.

Abonnementspreis pro Band: 110 forint. Bestellbar bei dem Buch- und Zeitungs-Aussenhandels-Unternehmen »Kultura« (Budapest I., Fő u. 32. Bankkonto Nr. 43-790-057-181) oder bei seinen Auslandsvertretungen und Kommissionären.

# ON A 2-MeV MICROTRON

By

ÉVA KISDI-KOSZÓ and L. TURI

CENTRAL RESEARCH INSTITUTE OF PHYSICS, BUDAPEST

(Presented by L. Jánossy. — Received 15. VIII. 1960)

The 2 MeV microtron having 8 orbits, designed, built and put into operation in our laboratory is described. Mean current intensities of  $5 \cdot 10^{-9}$  A with peaks of  $10^{-5}$  A are obtained on the last orbits, 50% of which can be brought from the accelerator into the laboratory.

## I. Introduction

The principle of operation of the microtron was established as early as 1945 by VEKSLER [1] and the realization of such accelerators has been made possible by the subsequent development of microwave techniques, i. e. sufficiently high (about 0.5 MeV) acceleration on rather short (cms) wavelengths. The first microtron, operated at 4 MeV was built in 1950 [2]. Since then several models of similar small size have been built at various laboratories [3], [4], [5] and in London already a second microtron with an end energy of 30 MeV has been put into operation. The 2 MeV microtron built in our laboratory at the Central Research Institute of Physics in Budapest was completed in 1958.\*

According to the principle of the microtron the accelerating voltage and the magnetic field have to satisfy the following resonance conditions:

$$V = \frac{mc^2}{e} \frac{a}{b-a},$$
$$H = 2\pi\nu \frac{mc}{e} \frac{1}{b-a},$$

where  $b > a$  are positive integers.  $b$  is the number of microwave periods the electrons need to complete the first orbit, while  $a$  is the difference in the times the electrons need for the completion of two subsequent orbits, given in microwave periods.

\* The microtron in operation was displayed at the Atomic Energy Exhibition in connection with the Geneva Conference in September, 1958.



In our microtron there was  $a = 1$ ,  $b = 3$  and the accelerating field frequency  $\nu = 2815$  Mc/s, thus the energy gained by a single acceleration is 250 KeV and the magnetic field to be applied is 500 gauss. An end energy of 2 MeV is attained by the completion of 8 orbits and the mean current intensity on the last orbit is  $5 \cdot 10^{-9}$  A with a peak of  $10^{-5}$  A.

## II. Description of apparatus and operational data

The accelerator consists of the following units:

### 1. Vacuum system

The necessary vacuum of the order of  $10^{-5}$  mm Hg was produced by a Balzers DUO 25 forevacuum pump with a performance of 25 m<sup>3</sup>/h and a Balzers 250 lit/sec speed diffusion pump. The vacuum tank of the accelerator is a cast brass cylinder, 40 cm in diameter and 10 cm high with a removable lid. Various apertures on the cylinder wall serve for introducing the accelerating cavity resonator with its mechanical tuning device, the electron extractor and opposite to the cavity resonator a Faraday cage for measuring. Through a small window opposite to the electron extractor the orbits may be viewed on a zinc sulphide screen mounted on the electron extractor or the Faraday cage which considerably facilitates the adjustment of the apparatus. In the waveguide the vacuum is sealed-off by a teflon plate inserted between two flanges. The microwave reflection thus produced is eliminated by a suitably shaped metal iris.

### 2. Magnet

The required magnetic field of 500 gauss is produced by an electromagnet with pole pieces, each 46 cm in diameter, leaving an air gap of 11.7 cm. Four pillars, each  $10 \times 10$  cm<sup>2</sup> in cross section form the magnetic return path for the flux. Access to the inside of the vacuum tank is provided by lifting the upper pole piece by means of a motor. The exciting coils of the magnet are mounted on the pole pieces. Power consumption is 450 w for 1000 gauss. The homogeneity of the magnetic field is measured by a magnetic field meter based upon paramagnetic resonance [7]. The result of the mapping of the magnetic field is shown in Fig. 1. The homogeneity of the magnetic field applied to the electron orbits is better than 99%.

### 3. Accelerating cavity resonator

As resonator we used a cylindrical cavity with truncated cones protruding into the inside of the cavity from the bottom and cover plates. The gap

used for the acceleration of the electrons is about 7 mm. The body is machined from a block of brass, the lid is made of 0.1 mm thick copper plate. The mechanical distortion of this plate is employed for the frequency tuning of the cavity

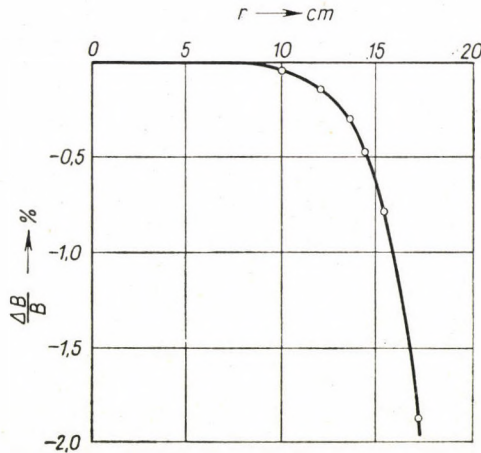


Fig. 1

from 2790 to 2910 Mc/s. An electrical coupling is provided between the cavity and the waveguide by a circular hole. The coupling is rather loose. The standing wave ratio produced on resonance is 1.3. The value of  $Q$  is 5300.

#### 4. Waveguide system

The microwave power is supplied by a magnetron with 250 kW peak output. The pulsed source is operated at 300 c/s repetition frequency with 2.2  $\mu$ sec pulse duration. The magnetron is coupled to the cavity resonator by a  $34 \times 72$  mm waveguide across a stabilizing load introduced into the latter by means of a series  $T$ -junction (Fig. 2). The tuning plungers are so set that in the case of resonance half of the magnetron output is fed into the cavity resonator whilst the rest goes to the stabilizing load. The magnetron output is measured by a thermistorized power meter connected to the directional coupler.

#### 5. Operational data

By exploiting the field emission as electron source current intensities of 10  $\mu$ A mean and 15 mA peak values are obtained from the cavity when no magnetic field is applied.

The energy spectrum of the electrons emerging from the cavity is measured by a 1 mm slit Faraday cage (Fig. 3). Calculating from the maximum



energy obtained the peak value of the accelerating voltage was found to be 260 kV.

Again the Faraday cage serves for determining the intensity distribution of the electron orbits obtained in the mode  $a = 1, b = 3$  (Fig. 4). The current measured on the last orbits is merely 0.4% of that obtained on the first one.

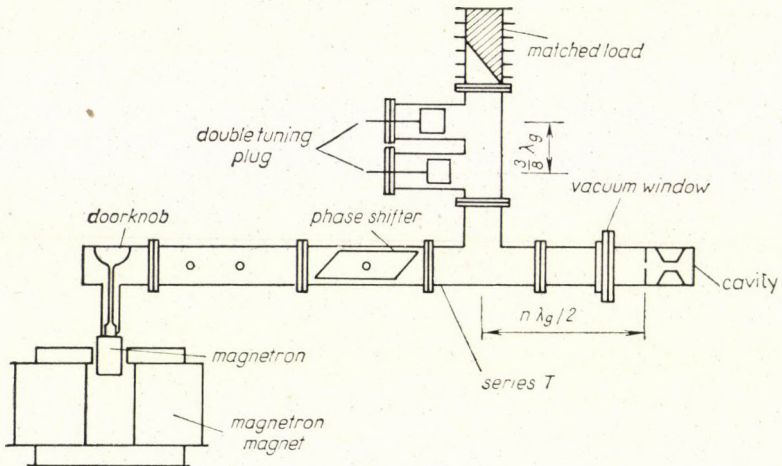


Fig. 2

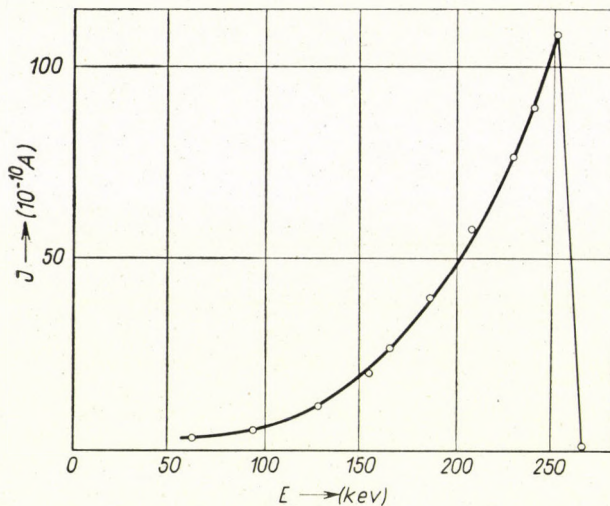


Fig. 3

The intensity lost between the first and the second orbit is about two orders of magnitude. By photographing the electron beam it was observed that

because of vertical drift only 10% of the electrons are returned into the cavity. Thus the high loss in current is only partly due to poor phase stability, almost the same loss may be attributed to vertical instability.

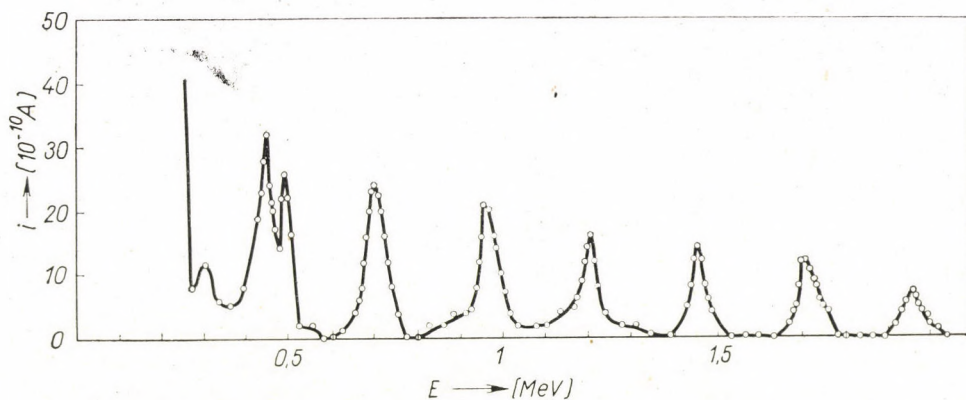


Fig. 4

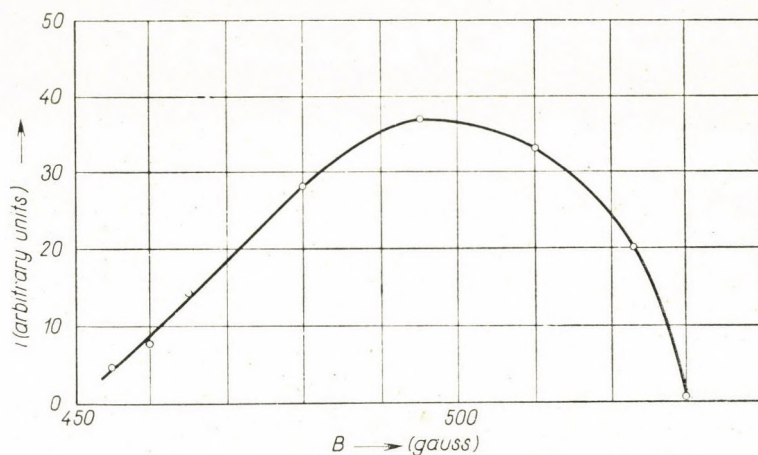


Fig. 5

From calculations it seems that the microtron is rather insensitive against variations in accelerating voltage and magnetic field. Resonance acceleration may be achieved even if these are changed by  $\pm 10\%$ . This has been proved also experimentally by varying the magnetic field during operation. By measuring the total current intensity on the 6th orbit on a collecting electrode in terms of the magnetic field, the curve to be seen in Fig. 5 was obtained.

The maximum intensity was obtained for 495 gauss. This is in good agreement with the expected value, that is 500 gauss, with an experimental error of 1% in the determination of the magnetic field.



The electrons are brought out from the microtron at any orbit, from the second to the eighth, by means of an iron tube turning on a ball joint and movable in and out. Through a 0.1 mm thick aluminium window 50—60% of the orbit current can be brought into the laboratory.

Summarizing our experiments with the microtron it can be said that it is easy to handle, stable in operation and therefore suitable for use in various fields. Its rather low average intensity can be increased by applying a higher output magnetron.

#### REFERENCES

1. V. VEKSLER, J. Phys. USSR, **9**, 153, 1945.
2. P. A. REDHEAD, H. LE CAINE and W. J. HENDERSON, Canad. J. Res. **A28**, 73, 1956.
3. C. HENDERSON, F. F. HEYMANN and R. E. JENNINGS, Proc. Phys. Soc. **B66**, 654, 1953.
4. H. F. KAISER, Journ. Franklin Inst., **257**, 107, 1954.
5. A. CARRELLI and F. PORRECA, Nuovo Cim., **6**, 729, 1957.
6. D. AITKEN and R. F. JENNINGS, Nature, **181**, 1726, 1958.
7. ÉVA KISDI-KOSZÓ and L. TURI, KFKI Köz. (Reports of the Centr. Res. Inst. Physics), **5**, 225, 1957 (in Hungarian).

#### О МИКРОТРОНЕ НА 2 MeV

Е. КИШДИ-КОСО и Л. ТУРИ

#### Резюме

Нами построен и пущен в действие восьмиорбитальный микротронный ускоритель на 2 MeV. Средняя интенсивность электронов на последних орбитах  $5 \cdot 10^{-9}$  А (в пик. импульса  $10^{-5}$  А). Из ускорителя можно вывести в лабораторию 50% данной величины

# ÜBER DIE BERECHNUNG DER POLARISATIONSENERGIE IN IONENGITTERN

Von

TH. NEUGEBAUER

INSTITUT FÜR THEORETISCHE PHYSIK DER ROLAND EÖTVÖS UNIVERSITÄT, BUDAPEST

(Vorgelegt von K. F. Novobátsky. — Eingegangen: 12. IX. 1960)

In der Einleitung werden die schon vor einigen Jahrzehnten aus der Quantenmechanik erhaltenen Resultate für die in Koordinationsgittern doch noch auftretenden Anteile der Polarisationsenergie und für die dabei induzierten höheren Momente kurz zusammengefasst. Aus diesen folgt, dass es kaum lohnend wäre, das selbe Problem jetzt noch nach der in diesem Falle viel schwerfälligeren klassischen Theorie zu berechnen. Danach werden in die erhaltenen Formeln erstens eine einfache Produkteigenfunktion und zweitens die antisymmetrische Determinanteneigenfunktion eingesetzt, und es wird gezeigt, dass sich für kugelsymmetrische Ionen die Ergebnisse auf eine so einfache Form bringen lassen, dass die tatsächliche Berechnung sich eigentlich nur auf eine Mittelung von geraden Potenzen von  $r$  über die Ladungsdichte reduziert (wie das z. B. aus (8) und (10) zu ersehen ist).

## Einleitung

Bekannterweise verschwindet die erste Näherung der Polarisationsenergie ( $-1/2 a E^2$ ) in Koordinationsgittern, wegen dem symmetrischen Aufbau dieser Kristalle. Höhere Näherungen dieser Energie können jedoch auftreten. Zur Berechnung von diesem in einem Ionengitter doch noch auftretenden Energieanteile, der infolge der von dem Felde der zuerst punktförmig angenommenen Nachbarionen verursachten Deformation eines Ions entsteht, müssen wir die Verteilung des Potentials innerhalb der Ausdehnung des fraglichen Ions berechnen. Nach der gewohnten Methode führen wir innerhalb dieses Ions ein Polarkoordinatensystem  $(r, \vartheta)$  ein und bezeichnen die Entfernung eines Nachbarions mit  $d$ . Dann haben wir also für die Potentialfunktion

$$V = \frac{e}{\sqrt{d^2 + r^2 - 2 dr \cos \vartheta}} = \frac{e}{d} \sum_{n=0}^{\infty} P_n(\cos \vartheta) \cdot \left(\frac{r}{d}\right)^n, \quad (1)$$

wo die  $P$  Kugelfunktionen (Legendre-Polynome) bedeuten. Die nullte Kugelfunktion ist jedoch in (1) unwesentlich, da sie ja nur eine additive Konstante in der Potentialfunktion bedeutet und kann deshalb weggelassen werden. Die erste gibt den bekannten Ausdruck für die Polarisation im homogenen Felde und die übrigen die höheren Näherungen.

Um alle unmittelbaren Nachbarionen zu berücksichtigen, müssen wir Formeln vom Typ (1) addieren. Die tatsächliche Durchführung dieser Rechnungen liefert für die Gitter, in denen binäre Stoffe kristallisieren, das folgende



Resultat [1]: Beim Steinsalz- und CsCl-Typ wird das erste nicht verschwindende Glied in der Reihenentwicklung des Potentials von der vierten Kugelfunktion geliefert, bei dem Zinkblende- und Wurtzittyp (solange man die Tetraeder im letzteren Typ als vollkommen symmetrisch annimmt) von der dritten, beim ganz symmetrischen (Raumgruppe  $D_{6h}^1$ ) Nickelarsenidtyp von der zweiten und endlich in einem Molekülgitter (z. B. in dem der Wasserstoffhalogenide) von der ersten Kugelfunktion. Im Steinsalzgitter kann man eine ganz einfache Formel für die von den sechs unmittelbaren Nachbarn erzeugte Potentialfunktion  $V$  angeben [1]:

$$\int_0^\pi \int_0^{2\pi} V^2 \sin \vartheta \, d\vartheta \, d\varphi =$$

$$= \frac{12 e^2}{d^2} \sum_{n=2}^{\infty} \frac{4\pi}{2n+1} \left\{ 1 + (-1)^{n/2} \frac{(n-1)(n-3)\dots 1}{n(n-2)\dots 2} 2 \left( \frac{r}{d} \right)^{2n} \right\}, \quad (2)$$

wo die Summe jedoch nur über die geraden Werte von  $n$  zu erstrecken ist.

Ganz analog zu dem Obigen kann man zeigen [2], dass im Steinsalz- und CsCl-Typ nur Sechzehnerpolmomente, im Zinkblende- und Wurtzittyp Oktupolmomente, im Nickelarsenidtyp Quadrupolmomente und im Molekülgitter auch Dipolmomente infolge der Polarisation auftreten.

In einem Gitter vom Steinsalztyp sind diese höheren Näherungen der Polarisationsenergie tatsächlich recht klein (jedoch nicht ganz unbedeutend), wie das die mit Hilfe von (2) durchgeführten quantenmechanischen Rechnungen des Verfassers [3] für KCl zeigen.

Doch gibt es noch eine ganz andere Ursache, welche ebenfalls zum Auftreten einer Polarisationsenergie führt. Berücksichtigen wir nämlich, dass die Nachbarionen keine Punktladungen sind, sondern ebenfalls eine Elektronenwolke besitzen, so wird die Wolke des betrachteten Ions in die der Nachbarionen eindringen und dort einem erhöhten Felde ausgesetzt sein, weil ja innerhalb dieser Elektronenwolke das Kernfeld schon weniger abgeschirmt ist. Besonders das Eindringen der lockeren Wolke des negativen Ions in die Elektronenwolken der umgebenden positiven Ionen wird in dieser Hinsicht recht bedeutungsvoll sein. Wie die Berechnungen zeigen [4], verursacht diese letztere Erscheinung eine Polarisationsenergie, die (im NaCl-Gitter) bedeutend grösser als die zuerst besprochene ist. Es ist zwar wahr, dass wenn man die Ladungswolke des negativen Ions als unendlich ausgedehnt annimmt, die Grösse dieser Energie dadurch überschätzt wird, weil ja dann auch noch am Orte des Kerns des positiven Ions die Ladungsdichte des negativen nicht gleich Null wäre. Dieses Gebiet muss also ausgeschlossen werden, was auch die unmittelbare physikalische Anschauung rechtfertigt, weil ja infolge der Fermistatistik die Wolke des negativen Ions nicht so tief in die der positiven eindringen wird. Wir verweisen bezüglich der Besprechung dieser Frage auf die Arbeiten von LANDSHOFF [5].



Angenähert kann man die Wirkung dieser Überdeckungspolarisation auch folgendermassen beschreiben: im Steinsalzgitter können selbstverständlich induzierte Dipole auch dann nicht auftreten, wenn man die Überdeckung berücksichtigt, Quadrupolmomente jedoch schon. (Selbstverständlich werden sich jedoch diese Quadrupolmomente, aus einer grösseren Entfernung betrachtet, wieder zu einem Sechzehnerpolmoment zusammensetzen.) Das Eindringen der Elektronenwolken ineinander verdirbt also den einfachen Zusammenhang, nach dem im Steinsalzgitter auch noch die von der zweiten Kugelfunktion verursachten Glieder verschwinden. Also werden diese auch schon in der Reihenentwicklung des Potentials auftreten. Diese Berechnungsmethode ist selbstverständlich weniger exakt als die Zerlegung der Polarisationsenergie in eine Überdeckungspolarisation und in die von den punktförmig gedachten Nachbarionen verursachten höheren Näherungen der Polarisierung; es ist jedoch zu bedenken, dass es sich sowieso nur um Korrektionsglieder handelt. Nach dieser letzteren Methode wurde die im KCl-Gitter (Sylvin) auftretende Polarisationsenergie zuerst berechnet [6]. Die bezüglich der Gitterenergie vom LiBr durchgeführten Berechnungen von GOMBÁS [7] enthalten sowohl die Überdeckungspolarisation wie die erwähnten höheren Näherungen der von den punktförmig gedachten Nachbarionen herrührenden Polarisationsenergie. Die schon erwähnten Untersuchungen von LANDSHOFF beziehen sich auf NaCl.

Diese in der deutschen Fachliteratur schon vor einem Vierteljahrhundert veröffentlichten Untersuchungen seien hier nur deshalb kurz zusammengefasst, weil sie nicht allgemein bekannt zu sein scheinen [8].

§ 1. Bezüglich der tatsächlichen Berechnung der erwähnten Energieanteile nach der Quantenmechanik sei gleich darauf aufmerksam gemacht, dass die so oft gemachte Erfahrung, dass physikalische Probleme sich nach der Quantenmechanik viel leichter und einfacher als nach der klassischen Theorie berechnen lassen, auch in diesem Falle sich bewahrheitet.

Für die Polarisierbarkeit in einem homogenen Felde erhält man bekannterweise nach der Quantenmechanik in den gewohnten Bezeichnungen

$$\alpha = 2 \sum_k' \frac{|\int \Psi_0 e^{\Sigma z} \bar{\Psi}_k d\tau|^2}{h\nu(k_0)}, \quad (3)$$

wo  $k$  alle Quantenzahlen und die  $\Psi_k$  die Eigenfunktionen des ganzen Elektronensystems bedeuten. Im betrachteten inhomogenen Felde müssen wir die für das fragliche Gitter berechnete Potentialfunktion  $V$  in die zweite Näherung der Schrödingerschen Störungstheorie einsetzen. Wir haben also

$$W_p = - \sum_k' \frac{|\int \Psi_0 e^{\Sigma V} \bar{\Psi}_k d\tau|^2}{h\nu(k_0)}. \quad (4)$$

Die Summen im Integrand von (3) und (4) sind über alle Elektronen zu erstrecken. Selbstverständlich müsste man zur tatsächlichen Berechnung von



(3) und (4) alle angeregten Energieniveaus und ausserdem alle dazugehörenden Eigenfunktionen kennen, deren Berechnung ist jedoch bei einem Vielelektronenproblem eine sehr schwierige Aufgabe. Doch können wir diese Schwierigkeit auf dem folgenden Wege umgehen: In (3) und (4) führen wir statt den Eigenfrequenzen  $\nu(k0)$  einen geeignet gewählten Mittelwert  $\bar{\nu}$  dieser Frequenzen ein. Die Summation bezieht sich dann in (3) und (4) nur mehr auf die Zähler und diese können dann nach dem bekannten matrizentheoretischen Zusammenhang

$$\sum_k' H(0k)H(k0) = H^2(00) - |H(00)|^2 \quad (5)$$

folgendermassen umgeformt werden:

$$\alpha = 2 \frac{\int \Psi_0 (e \Sigma z)^2 \bar{\Psi}_0 d\tau}{h\bar{\nu}} \quad (6)$$

und

$$W_p = - \frac{\int \Psi_0 (e \Sigma V)^2 \bar{\Psi}_0 d\tau - |\int \Psi_0 e \Sigma V \bar{\Psi}_0 d\tau|^2}{h\bar{\nu}} \quad (7)$$

Man kann leicht zeigen, dass das auf der rechten Seite von (5) stehende zweite Glied in (6) verschwindet. Benützt man weiter für  $\Psi_0$  eine einfache Produkteigenfunktion, so verschwinden z. B. alle bei der Berechnung des Zählers von (6) auftretenden bilinearen Glieder, so dass die Berechnung des Integrals sich auf eine Mittelung von  $1/3 r^2$  über die Ladungsdichte des Grundzustandes vereinfacht. Diese Ladungsverteilung kann man z. B. aus dem Thomas-Fermi Modell entnehmen oder Hartree-Focksche oder verschiedene halbempirische Eigenfunktionen usw. benützen. Ganz analog kann man auch (7) umformen. Es bleibt nur noch die Frage zu beantworten, welchen Wert man für  $\bar{\nu}$  einsetzen soll. Eine recht grobe Näherung ist es, für  $h\bar{\nu}$  die Ionisationsenergie (bzw. Elektronenaffinitätsenergie) zu benützen. Da jedoch in (6)  $\alpha$  (die Polarisierbarkeit) empirisch bekannt und der Zähler auf der rechten Seite, wie schon erwähnt, berechenbar ist, so können wir aus (6) einen wesentlich genaueren Wert von  $\bar{\nu}$  berechnen. Diesen setzen wir dann in (7) ein. Damit ist die im inhomogenen Felde auftretende Polarisationsenergie vollständig berechenbar.

§ 2. Zur tatsächlichen Durchführung der Berechnungen ist es zweckmässig für die (aus einer der erwähnten Näherungsmethoden berechneten) Elektronendichte die Dichtefunktion  $\rho(r)$  einzuführen. Dann haben wir (wenn wir tatsächlich einfach die Produkteigenfunktion benützen für (6)

$$\alpha = \frac{2e^2 \int 1/3 r^2 \rho(r) 4\pi r^2 dr}{h\bar{\nu}} \quad (8)$$

und daraus kann man  $h\bar{\nu}$  berechnen,

Die Berechnung von (7) scheint dagegen etwas verwickelter zu sein. Bei der Auswertung des ersten Gliedes im Zähler von (7) treten nämlich ausser den reinen Quadraten auch bilineare Glieder auf (die in (6) entstehenden analogen Glieder verschwinden wegen der Auswahlregeln), genau dieselben Glieder treten jedoch auch bei der Berechnung des zweiten Gliedes in (7) auf und diese heben sich dann gegenseitig auf. Wir haben also

$$W_p = - \frac{\int \Psi_0 e^2 \Sigma V^2 \bar{\Psi}_0 d\tau - \Sigma \left| \int \Psi_0 e V \bar{\Psi}_0 d\tau \right|}{h\nu}, \tag{9}$$

oder einfacher (analog zu (8)) geschrieben

$$W_p = - \frac{e^2 \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} V^2 \varrho(r) r^2 dr \sin \vartheta d\vartheta d\varphi - \sum_{i=1}^N \left| \int \Psi_0 e V_i \bar{\Psi}_0 d\tau \right|^2}{h\nu}. \tag{10}$$

$N$  bedeutet die Zahl der Elektronen des betrachteten Ions.

Das zweite Glied in Zähler von (10) wird ausserdem in den meisten Fällen verschwinden oder wenigstens vernachlässigbar klein sein. Das sieht man auf folgendem Wege ein. Betrachten wir nach (1) die Entwicklung von (10) nach Kugelfunktionen, so ist es erstens klar, dass alle von den Kugelfunktionen ungerader Laufzahl herrührenden Glieder in  $\int \Psi_0 e V \bar{\Psi}_0 d\tau$  verschwinden. Zweitens fängt ja die Reihe von  $V$  wegen der hohen Symmetrie der Koordinationsgitter meistens nur mit Kugelfunktionen von höherer Laufzahl an. Solche Glieder werden jedoch wegen des bekannten Zusammenhanges

$$\int_0^\pi P_n(\cos \vartheta) \cos^m \vartheta \sin \vartheta d\vartheta = 0, \quad \text{wenn } m < n \tag{11}$$

meistens verschwinden, wenn man für die Eigenfunktionen ihre winkelabhängigen Faktoren im fraglichen Gliede einsetzt. Damit reduziert sich das ganze Problem auf die Berechnung des ersten Gliedes im Zähler von (10).

Selbstverständlich könnten wir uns auch auf den Satz berufen, dass weil

$$\int_0^\pi P_n(\cos \vartheta) \sin \vartheta d\vartheta = 0 \tag{12}$$

ist, wenn  $n \neq 0$  ist (und die nullte Kugelfunktion kommt in der Reihe von  $V$  nicht vor, weil sie eine Konstante ist), das ganze zweite Glied im Zähler von (7) verschwindet. Wir können dann jedoch das erste Glied nicht unmittelbar in die in (10) angegebene einfache Form bringen.

§ 3. Alle unsere bisherigen Resultate haben wir unter der Annahme hergeleitet, dass man für die Eigenfunktion des fraglichen Ions einfach das Produkt der Eigenfunktionen seiner einzelnen Elektronen benutzen kann.



Man könnte sich denken, dass das nur eine sehr rohe Näherung ist und dass man wesentlich andere Resultate erhalten wird, wenn man statt der Produkteigenfunktion die antisymmetrische Determinanteneigenfunktion

$$\Psi = \frac{1}{\sqrt{N!}} \begin{vmatrix} \Psi_1(1) \dots \dots \Psi_1(N) \\ \vdots \\ \Psi_N(1) \dots \dots \Psi_N(N) \end{vmatrix} \quad (13)$$

einführt. Wie wir jedoch sehen werden, liegen in unserem Fall so spezielle Verhältnisse vor, dass das garnicht so sein wird. Um das zu zeigen, müssen wir jedoch (13) tatsächlich in unsere Rechnungen einführen. Im Zusammenhang mit der Berechnung der van der Waalsschen Kräfte wurde vom Verfasser [9] schon ein analoger Fall besprochen. Setzen wir also zuerst in (3) statt den Produkteigenfunktionen antisymmetrische Eigenfunktionen vom Typ (13) ein und benützen wir wieder die Umformung (5), so reduziert sich unser Problem auf die Berechnung von

$$\int \Psi (\sum ez)^2 \bar{\Psi} d\tau. \quad (14)$$

$\int \Psi \sum ez \bar{\Psi} d\tau$  verschwindet nämlich wieder wegen der bekannten Auswahlregeln.

Aus (14) und (13) folgt

$$\int \Psi \left( \sum_{i=1}^N z_i \right)^2 \bar{\Psi} d\tau = \int \Psi \sum_{i=1}^N z_i^2 \bar{\Psi} d\tau + \int \Psi \sum_{\substack{i,k \\ i \neq k}}^N z_i z_k \bar{\Psi} d\tau. \quad (15)$$

Das erste Glied auf der rechten Seite von (15) erhält man einfach dadurch dass man  $z^2$  (bzw.  $1/3 r^2$ ) über der Ladungsdichte mittelt, für das zweite Glied folgt mit Hilfe von (13)

$$\begin{aligned} \int \Psi \sum_{\substack{i,k \\ i \neq k}}^N z_i z_k \bar{\Psi} d\tau &= \frac{1}{N!} \sum_{\substack{i,k=1 \\ i \neq k}}^N \sum_{\substack{\mu, \nu=1 \\ \mu \neq \nu}}^N \int \psi_\mu(i) z_i \bar{\psi}_\mu(i) dv_i \cdot \int \psi_\nu(k) z_k \bar{\psi}_\nu(k) dv_k - \\ &\quad - \frac{1}{N!} \sum_{\substack{i,k=1 \\ i \neq k}}^N \sum_{\substack{\mu, \nu=1 \\ \mu \neq \nu}}^N \int \psi_\mu(i) z_i \bar{\psi}_\nu(i) dv_i \cdot \int \psi_\nu(k) z_k \bar{\psi}_\mu(k) dv_k. \end{aligned} \quad (16)$$

Das erste Glied auf der rechten Seite von (16) verschwindet jedoch wieder wegen der Auswahlregeln, zur Berechnung des zweiten führen wir zuerst bei festgehaltenem  $\mu$  und  $\nu$  die Summierung nach  $i$  und  $k$  durch. Zu jedem Wertepaar von  $\mu$  und  $\nu$  wird es  $N!$  solche Glieder geben, die nur in der Benennung

der Veränderlichen voneinander verschieden sind und deshalb dasselbe numerische Ergebnis liefern. Wir haben also

$$\int \Psi \sum_{\substack{i,k \\ i \neq k}} z_i z_k \bar{\Psi} d\tau = - \sum_{\mu,\nu} \left| \int \psi_\mu z \psi_\nu dv \right|^2 = - \sum_{\substack{n,l,m,s \\ n'l'm's'}} \left| \int \psi_{nlms} z \psi_{n'l'm's'} dv \right|^2. \tag{17}$$

Nach einer bekannten Summenregel [10] ist jedoch

$$\sum_m \left| z \begin{pmatrix} n' & l-1 & m \\ n & l & m \end{pmatrix} \right|^2 = \frac{1}{3} l \left| r \begin{pmatrix} n' & l-1 \\ n & l \end{pmatrix} \right|^2 \tag{18}$$

und daraus folgt für (17)

$$\int \Psi \sum_{\substack{i,k \\ i \neq k}} z_i z_k \Psi d\tau = - \frac{2}{3} \sum_{nn'} \sum_l \left\{ l \left| r \begin{pmatrix} n' & l-1 \\ n & l \end{pmatrix} \right|^2 + (l+1) \left| r \begin{pmatrix} n' & l+1 \\ n & l \end{pmatrix} \right|^2 \right\}. \tag{19}$$

Der Zweier-Faktor rührt vom Spin her. Wir haben also endlich aus (15), (16) und (19)

$$\int \Psi (\Sigma z)^2 \bar{\Psi} d\tau = \int \Psi \sum_{i=1}^N z_i^2 \bar{\Psi} d\tau - \frac{2}{3} \sum_{nn'} \sum_l \left\{ l \left| r \begin{pmatrix} n' & l-1 \\ n & l \end{pmatrix} \right|^2 + (l+1) \left| r \begin{pmatrix} n' & l+1 \\ n & l \end{pmatrix} \right|^2 \right\} \tag{20}$$

oder einfacher mit Hilfe der schon früher eingeführten Bezeichnungen geschrieben

$$\int \Psi (\Sigma z)^2 \bar{\Psi} d\tau = \frac{4}{3} \pi \int \varrho(r) r^4 dr - \frac{2}{3} \sum_{nn'} \sum_l \left\{ l \left| r \begin{pmatrix} n' & l-1 \\ n & l \end{pmatrix} \right|^2 + (l+1) \left| r \begin{pmatrix} n' & l+1 \\ n & l \end{pmatrix} \right|^2 \right\}. \tag{21}$$

Für die Polarisierbarkeit folgt also aus (3), (5), (6), (13) und (21)

$$a = \frac{2 e^2 \left[ \frac{4}{3} \pi \int \varrho(r) r^4 dr - \frac{2}{3} \sum_{nn'} \sum_l \left\{ l \left| r \begin{pmatrix} n' & l-1 \\ n & l \end{pmatrix} \right|^2 + (l+1) \left| r \begin{pmatrix} n' & l+1 \\ n & l \end{pmatrix} \right|^2 \right\} \right]}{h \bar{\nu}} \tag{22}$$

Wenn wir dieses Resultat mit (8) vergleichen, so sehen wir, dass jetzt infolge der Benützung der antisymmetrischen Eigenfunktion statt der einfachen Produkteigenfunktion das zweite Glied im Zähler von (22) hinzugetreten ist.



Setzen wir jetzt ganz analog zu den obigen Berechnungen auch in (4) statt der Produkteigenfunktionen antisymmetrische Determinanteneigenfunktionen vom Typ (13) ein, so können wir erstens wieder mit Hilfe der Umformung (5) und zweitens durch Einführung eines Frequenzmittelwertes  $\bar{\nu}$  die zu (7) analoge Formel

$$W_p = - \frac{\int \Psi (e\Sigma V)^2 \bar{\Psi} d\tau - \left| \int \Psi e\Sigma V \bar{\Psi} d\tau \right|^2}{h\bar{\nu}} \quad (23)$$

herleiten. Die weiteren Rechnungen sind denen, die von (15) zu (22) geführt haben, weitgehend analog.

Wir erhalten also erstens ganz ähnlich zu (15) und (16)

$$\int \Psi (\Sigma V)^2 \bar{\Psi} d\tau = \int \Psi \sum_{i=1}^N V_i^2 \bar{\Psi} d\tau + \int \Psi \sum_{\substack{i,k \\ i \neq k}}^N V_i V_k \bar{\Psi} d\tau \quad (24)$$

und

$$\begin{aligned} \int \Psi \sum_{\substack{i,k \\ i \neq k}}^N V_i V_k \bar{\Psi} d\tau &= \frac{1}{N!} \sum_{\substack{i,k \\ i \neq k}}^N \sum_{\mu, \nu=1}^N \int \psi_\mu(i) V_i \bar{\psi}_\mu(i) dv_i \cdot \int \psi_\nu(k) V_k \bar{\psi}_\nu(k) dv_k - \\ &- \frac{1}{N!} \sum_{\substack{i,k \\ i \neq k}}^N \sum_{\mu, \nu}^N \int \psi_\mu(i) V_i \bar{\psi}_\nu(i) dv_i \cdot \int \psi_\nu(k) V_k \bar{\psi}_\mu(k) dv_k. \end{aligned} \quad (25)$$

Weiter folgt

$$\left| \int \Psi \Sigma V \bar{\Psi} d\tau \right|^2 = \left| \frac{1}{N!} \sum_{i=1}^N \sum_{\mu=1}^N \int \psi_\mu(i) V_i \bar{\psi}_\mu(i) dv_i \right|^2. \quad (26)$$

Das erste Glied auf der rechten Seite von (25) verschwindet jetzt zwar nicht mehr infolge der Auswahlregeln, wie das in (16) der Fall war, doch folgen aus dem zweiten Gliede von (23), wenn man (26) einsetzt, die selben bilinearen Glieder mit entgegengesetztem Verzeichen und diese heben sich gegenseitig weg. Es bleibt also nur das zweite Glied in (25) und die aus (26) folgenden rein quadratischen Glieder übrig. Weiter können wir jetzt schon das erste Glied in (24) ganz analog wie in (10) schreiben. Aus (23), (24), (25) und (26) folgt also

$$\begin{aligned} W_p &= - \frac{e^2 \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} V^2 \varrho(r) r^2 dr \sin \vartheta d\vartheta d\varphi - \sum_{i=1}^N \left| \int \Psi e V_i \bar{\Psi} d\tau \right|^2}{h\bar{\nu}} + \\ &+ \frac{\frac{e^2}{N!} \sum_{\substack{i,k \\ i \neq k}}^N \sum_{\mu, \nu=1}^N \int \psi_\mu(i) V_i \bar{\psi}_\nu(i) dv_i \cdot \int \psi_\nu(k) V_k \bar{\psi}_\mu(k) dv_k}{h\bar{\nu}}. \end{aligned} \quad (27)$$



Ein Vergleich von (10) und (27) zeigt, dass infolge der Benutzung der antisymmetrischen Eigenfunktion das zweite Glied in (27) zur Formel von  $W_p$  hinzuge treten ist.

Diese Polarisationsenergie ist selbstverständlich immer negativ, verstärkt also die Bindung im Gitter. Andererseits treten jedoch infolge der Polarisation auch induzierte Momente auf und deren Feld wirkt den elektrostatischen Feldern der Ionenladungen entgegen. Die Polarisationserscheinungen bedeuten ja immer einen gewissen Übergang von der Ionenbindung zur homöopolaren und die Ionenladungen werden demzufolge abgeschwächt. Die elektrostatische Gitterenergie wird dadurch numerisch kleiner als jene, welche man unter der Annahme von ganzen Ionenladungen mit Hilfe der Madelungschen Konstante berechnet. Diese induzierten Momente kann man, wie das vom Verfasser gezeigt wurde [2], ohne Schwierigkeit nach der Quantenmechanik berechnen. Es ist jedoch zu bemerken, dass erstens, wenn die Polarisationsenergie klein ist, diese Momente um so kleiner sein werden, also die Gitterenergie mehr kaum beeinflussen und zweitens, dass bei der Berechnung der von diesen Momenten verursachten elektrostatischen Energie nicht nur die Grösse, sondern auch der Ort dieser Momente (z. B. von zwei entgegengesetzten Dipolmomenten, die man jedoch wegen der endlichen Ausdehnung der Elektronenwolke nur annähernd zu einem Quadrupolmoment zusammenfassen kann) wesentlich ist. Die letztere ist jedoch gegenüber der richtigen Wahl der Eigenfunktionen viel empfindlicher als die Polarisationsenergie und die Eigenfunktionen eines Vielelektronenproblems sind noch garnicht so genau bekannt dass es lohnend sein würde diesen sehr kleinen Energieanteil zu berechnen. Dazu kommt noch, dass in sehr symmetrischen Gittern die Überdeckungspolarisation sowieso viel bedeutender ist. Wird dagegen die Polarisationsenergie in einem Gitter relativ gross (wie z. B. bei denen im Zinkblendegitter kristallisierenden binären Transistoreigenschaften aufweisenden Verbindungen), so hat es keinen Sinn mehr, von dem Ionenmodell auszugehen, weil die Bindung schon grösstenteils homöopolar wird.

§ 4. Man könnte denken, dass die infolge der Benutzung der antisymmetrischen Eigenfunktion zu (8) und (10) hinzutretenden Glieder, denen zufolge diese Formeln in unsere Resultate (22) und (27) übergehen, recht wesentlich sind. Tatsächlich zeigen numerische Berechnungen des Verfassers, dass sich demzufolge der Wert des Zählers in der Formel für  $a$  um über 30% ändern kann. Benützen wir also die einfache Produkteigenfunktion und berechnen dann mit Hilfe des experimentell bekannten Wertes von  $a$  aus der einfachen Formel (8) den dazugehörenden Frequenzmittelwert  $\bar{\nu}$ , so werden wir auch diesen um über 30% zu hoch schätzen. Wenn wir jedoch  $W_p$  ebenfalls aus der einfachen Formel (10) berechnen, in die wir den erwähnten zu grossen Wert von  $\bar{\nu}$  einsetzen, so wird der Fehler, den wir damit begehen, dass wir statt (27) die einfache Formel (10) benutzen, weitgehend ausgeglichen sein. Das folgt



einfach daraus, dass die in (22) und (27) auftretenden Korrektionsglieder ganz analog zueinander sind, und deshalb die erhaltenen numerischen Ergebnisse sehr weitgehend in dem selben Masse beeinflussen werden. Ausserdem ist ja noch zu bedenken, dass erstens die Polarisationsenergie sowieso nur ein Korrektionsglied ist und zweitens, dass die Eigenfunktionen eines Vielelektronenproblems auch nicht so genau bekannt sind, dass es noch einen Sinn hätte, den Umstand zu berücksichtigen, dass die erwähnte Kompensation nicht ganz vollständig ist.

Unser Resultat ist also, dass man bei der Berechnung der Polarisationsenergie in einem Koordinationsgitter ganz ruhig von unseren einfachen Formeln (8) und (10) ausgehen kann, wobei in der letzteren Formel das zweite Glied im Zähler meistens noch wegbleiben kann.

Zum Schluss sei nur noch erwähnt, dass man sich sogar die Mühe der numerischen Berechnung des Zählers von (8) meistens ersparen kann, weil ja dieser auch in der Formel für die diamagnetische Suszeptibilität, die wir in unseren hier benützten Bezeichnungen als

$$\chi = - \frac{e^2 L}{6 mc^2} 4\pi \int_0^\infty \rho(r) r^4 dr \quad (28)$$

schreiben können, vorkommt und deshalb aus den experimentell bekannten Werten von  $\chi$  entnommen werden kann.

#### LITERATUR

1. TH. NEUGEBAUER, Z. f. Physik, **95**, 717, 1935.
2. TH. NEUGEBAUER, Z. f. Kristallographie, (A) **94**, 349, 1936.
3. TH. NEUGEBAUER, Z. f. Physik, **100**, 534, 1936.
4. TH. NEUGEBAUER, Z. f. Physik, **90**, 693, 1934.
5. R. LANDSHOFF, Z. f. Physik, **102**, 201, 1936; Phys. Rev., **52**, 246, 1937.
6. TH. NEUGEBAUER, u. P. GOMBÁS, Z. f. Physik, **89**, 480, 1934. Vgl. auch TH. NEUGEBAUER, Z. f. Physik, **90**, 693, 1934.
7. P. GOMBÁS, Z. f. Physik, **92**, 796, 1934.
8. F. W. DE WETTE, Physica, **25**, 1225, 1959.
9. TH. NEUGEBAUER, Z. f. Physik, **107**, 785, 1937.
10. Z. B. GEIGER-SCHEEL, Handbuch der Physik, 2. Aufl. Bd. XXIV/1, Artikel von H. BETHE, S. 433.

## ВЫЧИСЛЕНИЕ ПОЛЯРИЗАЦИОННОЙ ЭНЕРГИИ В РЕШЕТКАХ ИОНОВ

Т. НАЙГЕБАУЭР

## Резюме

В введении подводятся итоги результатов, выведенных ранее на основе квантовой механики для тех частей поляризационной энергии, которые в координационных решетках сохраняются, несмотря на высокую симметрию, а также высшие моменты, соответствующие данным частям энергии. Из этих итогов, в первую очередь, следует, что в данный момент вряд ли является целесообразным решать эту проблему по классической теории, представляющей собой в данном случае еще более громоздкую в смысле применения теории, хотя в последнее время в литературе имелось несколько попыток с целью решить эту проблему. После этого в выведенные уравнения подставляются сначала простая собственная функция произведения, а потом антисимметрическая собственная функция детерминанта. Показывается, что в случае ионов, обладающих сферической симметрией, результаты можно привести к такому простому виду, что действительный расчет сводится к усреднению четных степеней  $r$  по плотности зарядов (как это видно из уравнений [8] и [10]).





# PARAMAGNETIC SUSCEPTIBILITY OF CONDUCTION ELECTRONS CALCULATED BY THE AID OF ANALYTICAL FORMULAS FOR THE THEORY OF THE FORMATION OF ELECTRON GROUPS IN THE PERIODIC SYSTEM OF ELEMENTS

By

T. TIETZ

DEPARTMENT OF THEORETICAL PHYSICS, UNIVERSITY ŁÓDŹ, ŁÓDŹ, POLAND

(Presented by A. Kónya. — Received 30. IX. 1960)

In this paper taking into account the considerations of the author concerning analytical formulas for the theory of the formation of electron groups in the periodic system of elements, we calculate the paramagnetic susceptibility of conduction electrons by means of the modified formula of PAULI. The results are compared with the experimental values.

In case of the Thomas—Fermi atom the electronic density  $\varrho(r)$  is well known [1] and can be expressed in terms of a universal function  $\varphi$  of all atoms. The Thomas—Fermi function  $\varphi$  of a free neutral atom is defined by the following differential equation together with the following boundary conditions.

$$\varphi'' = \varphi^{3/2}/x^{1/2} \quad \text{and} \quad \varphi(0) = 1, \quad \varphi(\infty) = 0. \quad (1)$$

THEIS [2] in contrast to JENSEN and LUTTINGER [3] has shown that it is possible to quantize uniquely the square of the angular momentum in the statistical theory of the atom. The problem of quantization of the square angular momentum in the Thomas—Fermi theory was discussed in particular by OLIPHAN [4] as well as by IVANENKO and LARIN [5].

THEIS has shown that it is possible in the statistical theory of the atom to ascribe to the square angular momentum the correct eigenvalues  $\hbar^2 l(l+1)$ . At the same time he removed the arbitrariness of the statistical theory which gives for the square angular momentum the eigenvalues  $\hbar^2 \left(l + \frac{1}{2}\right)^2$ , which do not agree with the correct quantum mechanical eigenvalues. THEIS taking into account the considerations of JENSEN and LUTTINGER concerning the number  $N_l$  of particles which can be ascribed to the square angular momentum with the correct eigenvalues  $\hbar^2 l(l+1)$  obtained for  $N_l$  the following formula:

$$N_l = N(L^2 \hbar^2) - N((l+1)^2 \hbar^2), \quad (2)$$

where

$$N(L^2) = Z \int \left\{ x\varphi(x) - a \right\}^{3/2} \frac{dx}{x} \quad \text{and} \quad a = \frac{L^2}{\hbar^2} \left( \frac{4}{3\pi Z} \right)^{2/3}. \quad (3)$$



In formula (3) the symbol  $L$  appearing in the left-hand terms stands for  $l^2\hbar^2$  or  $(l+1)^2\hbar^2$ .  $Z$  is the atomic number and the integration is carried out over such values of  $x$  for which the integrated function is positive. According to THEIS and OLIPHANT, the formula for  $N_l$  given by eq. (2) and (3) gives better results than the corresponding formula for  $N_k$  originally given by FERMI [6].

$$N_k = 2 \left( \frac{6Z}{\pi^2} \right)^{1/3} k \Phi(\alpha), \quad \text{where} \quad k = 1/2, 3/2, 5/2, \dots \quad (4)$$

The function  $\Phi(\alpha)$  appearing in eq. (4) is given by

$$\Phi(\alpha) = \int [x\varphi(x) - \alpha]^{1/2} \frac{dx}{x}, \quad (5)$$

where

$$\alpha = \left( \frac{4}{3\pi Z} \right)^{2/3} k^2. \quad (6)$$

The author [7] of this paper using his approximate formula for the Thomas—Fermi function  $\varphi$  for a free neutral atom has obtained for  $N_l$  and  $N_k$  the following analytical expressions:

$$N_l = (8/3) [l^3 - (l+1)^3] + (48Z)^{1/3} [(l+1)^2 - l^2] \quad (7)$$

and

$$N_k = 4 (6Z)^{1/3} k \left[ 1 - \left( \frac{4}{3Z} \right)^{1/3} k \right]. \quad (8)$$

According to the calculation given by the author in the last paper quoted in ref. [7]  $N_l$  gives results which are slightly better than  $N_k$ . Therefore in the further considerations we shall use only  $N_l$ . Using formula (7) we calculate in this paper the volume paramagnetic susceptibilities  $\chi_p$ . As known the paramagnetic volume susceptibilities obtained by PAULI [8] according to the Fermi—Dirac statistics are given by

$$p\chi_p = \left[ \left( \frac{3}{2} \right) \left( \frac{N\mu_B^2}{E_F} \right) \right] \left[ 1 - \frac{\pi^2}{12} \left( \frac{kT}{E_F} \right)^2 \right], \quad (9)$$

where  $E_F$  is known as the Fermi energy and  $N$  is the number of free electrons per unit volume. The Fermi energy is  $E_F = \hbar^2(3N)^{2/3}/8m\pi^{2/3}$  and  $\mu_B$  appearing in formula (9) is the Bohr magneton  $\mu_B = e\hbar/2mc$ . The symbol  $k$  in eq. (9) is Boltzman's constant. Since the second right-hand term is small compared to unity the electron spin paramagnetism of free electrons in metals is practically independent of the temperature  $T$ , so that

$$p\chi_p = \frac{3 N \mu_B^2}{2 E_F} = 2.20817 \cdot 10^{-14} N^{1/3}. \quad (10)$$

Calculating the coefficient of  $N$  we have used the most accurate values for the electronic charge  $e$ , the electron rest mass  $m$ , the velocity of light  $c$  and Planck's constant  $h$  given by COHEN and DU MOND [9].

The number of free electron  $N$  per unit volume we can express by the atomic weight  $W$  the density  $\rho$  and Avogadro's number  $A$  as follows.  $N = \rho A/W$ . Thus formula (10) for the volume paramagnetic susceptibilities  ${}_P\chi_p$  given by PAULI takes the form

$${}_P\chi_p = 2.20817 \cdot 10^{-14} \left( \frac{\rho A}{w} \right)^{1/3}. \quad (11)$$

LANDAU [10] and POSENER [11] have shown that the volume diamagnetism of free conduction electrons, except for the sign, is one-third of that given in eq. (11). This means that we can accept for the LANDAU volume paramagnetic susceptibilities  ${}_L\chi_p = \frac{2}{3} {}_P\chi_p$ . Both PAULI and LANDAU suppose that the number of free electrons per volume unit equals the number of atoms. If we assume that for a given atom not only one electron can be considered as free but all  $N_l$  electrons for the highest  $l$ , this means that when considering  $s - p - d$  electrons all  $d$ -electrons are free electrons and so on. Adopting this assumption and taking into consideration the LANDAU expression for the volume paramagnetic susceptibilities we obtain in our case for  ${}_L\chi_p^{(1)}$  the following formula:

$${}_L\chi_p = 1.472112 \cdot 10^{-14} \left( \frac{\rho A N_c}{W} \right)^{1/3}, \quad (12)$$

where  $N_l$  is given by eq. (7). For Avogadro's number  $A$  we accept the value given by COHEN and DU MOND, i. e.  $A = 6.02486 \cdot 10^{23}$  (g · mole)<sup>-1</sup>. In Table I we have calculated  $N_l$  for several paramagnetic elements. For comparison the values of  ${}_L\chi_p$ ,  ${}_P\chi_p$  and  ${}_L\chi_p^{(1)}$  are collected there too for a given density and atomic weight. In Table II we have a comparison of the results for the volume paramagnetic susceptibilities of PAULI and those corrected for the effective mass of PAULI  ${}_P\chi_p$  and  ${}_L\chi_p^{(1)}$ , with the corresponding values of PINES [12] and the corresponding experimental values for Na, K, Rb, Cs. Table II shows that our results for  ${}_L\chi_p^{(1)}$  agree well with the experimental ones. Comparing our results given in Table II with the previous results given by the author [13] in a short note we see that the present results are better by about 5% than the previous results. Those were based on the formula (8) for  $N_K$ .



Table I

A comparison of the results for the volume paramagnetic susceptibilities in the case of PAULI, LANDAU and the author. The dotted horizontal line . . . denotes that the numbers  $N_i$  of the  $s-p-d-f$  electrons exist, but in our case they are uninteresting

Element	Na	Mg	Al	K	Ca	Rb	Sr	Cs	Ba	W	Pt
Atomic number ( $Z$ )	11	12	13	19	20	37	38	55	56	74	78
Densities ( $\rho_{20^\circ\text{C}}$ )	0.971	1.74	2.70	0.862	1.55	1.532	2.54	1.87	3.75	19.3	21.5
Atomic weight ( $W$ )	22.997	24.32	26.97	39.096	40.08	85.45	87.63	132.91	137.36	184.0	195.23
Number of $s$ -electrons ( $N_0$ )	...	...	...	...	...	...	...	...	...	...	...
Number of $p$ -electrons ( $N_1$ )	5.58	6.29	7.07	10.43	10.93	...	...	...	...	...	...
Number of $d$ -electrons ( $N_2$ )	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	9.88	10.42	18.44	18.85	...	...
Number of $f$ -electrons ( $N_3$ )	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	8.14	10.03
LANDAU $L\chi_p \cdot 10^6$	0.433	0.516	0.577	0.349	0.421	0.325	0.385	0.278	0.374	0.586	0.560
PAULI $P\chi_p \cdot 10^6$	0.649	0.774	0.866	0.523	0.631	0.488	0.578	0.417	0.562	0.880	0.894
Our results $L\chi_p^{(1)} \cdot 10^6$	0.768	0.953	1.108	0.762	0.934	0.698	0.841	0.793	0.996	0.937	1.285

Table II

A comparison of the results for the volume paramagnetic susceptibilities in case of PAULI, PINES and the author with the experimental results

Element	Na	K	Rb	Cs
Effective mass ( $m^*/m$ ) <sup>a</sup>	0.98	0.93	0.89	0.83
PAULI ( $\rho\chi_p \cdot 10^6$ )	0.64	0.49	0.43	0.35
PINES ( $\chi_p \cdot 10^6$ )	0.85	0.61	0.53	0.44
Our results ( $L\chi_p^{(1)} \cdot 10^6$ )	0.75	0.71	0.62	0.66
Experimental results ( $\chi_p \cdot 10^6$ )	0.95 <sup>b</sup> 0.75 <sup>c</sup> 0.80 <sup>d</sup>	0.73 <sup>d</sup>	0.61 <sup>d</sup>	0.58 <sup>d</sup>

a These values of the effective mass are those of HARVEY BROOKS; see D. PINES, Phys. Rev., **95**, 1090, 1954.

b R. T. SCHUMACHER and C. P. SLICHTER, Phys. Rev., **101**, 58, 1956.

c T. KJELDAAS Jr. and W. KOHN, Phys. Rev., **101**, 66, 1956.

d E. C. STONER, Magnetism, London, Methuen, 1946; p. 119.

## REFERENCES

1. P. GOMBÁS, Die statistische Theorie des Atoms und ihre Anwendungen, Springer Verlag, Wien, 1949; as also Statistische Behandlung des Atoms, Encyclopedia of Physics, edited by S. FLÜGGE Vol. **36**, Springer Verlag, Berlin—Göttingen—Heidelberg, 1956.
2. W. R. THEIS, Z. Physik, **140**, 1, 1955.
3. J. H. JENSEN and J. M. LUTTINGER, Phys. Rev., **86**, 907, 1952.
4. T. A. OLIPHANT, Phys. Rev., **104**, 954, 1956.
5. D. IVANENKO and S. LARIN, Doklady Akademii Nauk S. S. S. R., **88**, 45, 1953.
6. E. FERMI, Z. Physik, **48**, 73, 1928; see also ref. [1].
7. T. TIETZ, J. of Chem. Phys., **23**, 1560, 1955; Acta Phys. Hung., **9**, 73, 1958; Ann. d. Phys., **5**, 237, 1960.
8. W. PAULI, Z. Phys., **41**, 99, 1927.
9. E. R. COHEN and J. W. M. DU MOND, Encyclopedia of Physics, edited by S. FLÜGGE, Vol. **35**, Springer Verlag, Berlin—Göttingen—Heidelberg, 1957.
10. L. LANDAU, Z. Phys., **64**, 629, 1930.
11. L. POSENER, Z. Phys., **75**, 809, 1932.
12. D. PINES, Phys. Rev., **95**, 1090, 1954.
13. T. TIETZ, J. Chem. Phys., **28**, 261, 1958.

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПАРАМАГНИТНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ ЭЛЕКТРОНОВ  
ПРОВОДИМОСТИ С ПОМОЩЬЮ АНАЛИТИЧЕСКИХ ФОРМУЛ ДЛЯ СЛУЧАЯ  
ТЕОРИИ ОБРАЗОВАНИЯ ЭЛЕКТРОННЫХ ГРУПП В ПЕРИОДИЧЕСКОЙ  
СИСТЕМЕ ЭЛЕМЕНТОВ

Т. ТИТЦ

Резюме

В данной работе, принимая во внимание представление автора по отношению аналитических выражений в теории образования электронных групп в периодической системе элементов, на основе измененной формулы Паули вычисляется парамагнитная восприимчивость электронов проводимости. Результаты сравниваются с экспериментальными данными.





# LEHMANN—KÄLLÉN-THEOREM UND GEOMETRIE DER MINKOWSKI-WELT

Von

G. HEBER

THEORETISCH-PHYSIKALISCHES INSTITUT DER KARL-MARX-UNIVERSITÄT, LEIPZIG, DDR

(Vorgelegt von K. F. Novobátsky. — Eingegangen 2. X. 1960)

Es wird diskutiert, ob in einigen kürzlich vorgeschlagenen allgemeinen Raum-Zeit-Geometrien das Theorem von LEHMANN und KÄLLÉN über die Singularitäten der Ausbreitungsfunktionen in einer Feldtheorie anwendbar ist oder nicht. Wir finden Beispiele für beide Fälle.

## 1. Einführung

Bekanntlich haben LEHMANN [1] und KÄLLÉN [2] das folgende Theorem bewiesen:

»Jede Feldtheorie, die

1. lorentzinvariant\* ist,

2. einen Vakuum-Zustand (Zustand kleinster Energie) besitzt,

3. bei der die Eigenzustände des Energie-Impuls-Operators ein vollständiges Basis-System in einem Hilbert-Raum positiv-definiten Metrik aufspannen, hat Ausbreitungsfunktionen mit Singularitäten auf dem Lichtkegel. Diese Singularitäten sind mindestens ebenso stark wie bei den bekannten Theorien isolierter Felder.«

Nun ist vorläufig noch nicht klar, ob diese Singularitäten in den Ausbreitungsfunktionen zu unannehmbaren Resultaten bezüglich beobachtbarer Größen führen oder nicht. Klar ist nur, dass sie bei störungstheoretischer Behandlung der Theorie zu divergenten Selbstmassen und Selbstladungen führen. (Man muss dann Zuflucht bei der bekanntlich aus verschiedenen Gründen nicht sehr befriedigenden Methode der Renormierung suchen.) Man weiss aber noch nicht, ob die Singularitäten der Ausbreitungsfunktionen in der strengen Lösung einer realen Theorie stören oder nicht. (In idealisierten Modelltheorien sind beide Fälle verifiziert.)

Trotz dieser noch unklaren Bedeutung des Theorems für reale Theorien ist es verständlich, dass man gegenwärtig versucht, Theorien aufzubauen, in denen das Theorem entweder bedeutungslos oder aber ungültig wird. Beispiele für Bemühungen der ersten Art sind Ansätze zu einer reinen S-Matrix-Theo-

\* Es genügt sogar schon Invarianz gegen infinitesimale Translationen in 4 Dimensionen!



rie [3] oder die Überlegungen von LEHMANN, SYMANZIK und ZIMMERMANN [4], wo entweder überhaupt keine oder keine unrenormierten Feldgrößen mehr auftreten. Beispiele für Ansätze der zweiten Art sind alle Untersuchungen, die einen Hilbert-Raum mit indefiniter Metrik benutzen, siehe etwa [5].

Bei Einführung eines Hilbert-Raums mit indefiniter Metrik wird also Voraussetzung 3. (siehe oben) des LEHMANN—KÄLLÉN-Theorems ausser Kraft gesetzt. Damit gilt zwar das LEHMANN—KÄLLÉN-Theorem nicht, aber man hat neue Schwierigkeiten eingeführt, die mit der Unmöglichkeit der physikalischen Deutung negativer Wahrscheinlichkeiten zusammenhängen. Es ist zur Zeit meines Erachtens noch nicht völlig klar, ob man diese neuen Schwierigkeiten umgehen kann, aber ganz abgesehen davon hat der Autor den Eindruck, dass es sich hierbei um einen physikalisch nicht gut motivierten formalen Kunstgriff handelt.

Physikalisch wesentlich plausibler und vor allem viel durchsichtiger wäre nach Meinung des Autors eine Ausser-Kraftsetzung des LEHMANN—KÄLLÉN-Theorems mittels einer geeigneten Abänderung der Geometrie unserer Raum-Zeit-Welt, also insbesondere Aufgabe von obiger Voraussetzung 1. Es ist meines Erachtens verlockend (oder sogar ganz natürlich), versuchsweise anzunehmen, dass diese Geometrie im Kleinen (Subatomaren) anders beschaffen ist als im Grossen. Die Translationsinvarianz läßt sich ja offensichtlich direkt und streng nur im Bereich der makroskopischen Welt verifizieren.

Nun sind in letzter Zeit entweder aus diesen oder aus anderen Gründen verschiedene allgemeinere Geometrien untersucht worden. Zweck dieser Arbeit ist es, bei einigen von diesen neuen Geometrien zu prüfen, ob sie die Voraussetzung 1. des LEHMANN—KÄLLÉN-Theorems ausser Kraft setzen oder nicht.

## 2. Rzewuskis Spinorraum

Von RZEWUSKI stammt der Vorschlag, die Feldgrößen einer jeden Feldtheorie nicht im Minkowski-Kontinuum, sondern in einem Spinorraum zu definieren [6]. Das heisst an die Stelle des Ortsvektors  $x_a$  tritt ein Spinor  $z_\mu$  mit 4 komplexen, also 8 reellen Komponenten. Die  $x_a$  hängen mit den  $z_\mu$  im einfachsten Falle bilinear zusammen. Hauptvorteil dieser neuen Geometrie ist, daß die Erhaltungssätze für die elektrische Ladung und den Isospin sich in ihr geometrisch begründen lassen. Ferner kann man mit Hilfe einer solchen Feldtheorie Teilchen mit Struktur in gewissem Sinne beschreiben. Es ist aber noch nicht zu sehen, wodurch das LEHMANN—KÄLLÉN-Theorem ausser Kraft gesetzt werden könnte, denn die gesamte Theorie ist lorentzinvariant aufgebaut.



### 3. Rayskis bilokale Theorie

In der bilokalen Theorie RAYSKIS [7] tritt auch ein 8-dimensionaler Raum auf, der aber als Verdoppelung des Minkowski-Raumes erklärt wird. Auch auf diese Weise gibt es die Möglichkeit, Teilchen mit Struktur zu beschreiben, und zwar sind es im einfachsten Falle Teilchen, die aus 2 Massenpunkten bestehen. Diese Teilchen-Struktur wird bei RAYSKI in lorentzinvarianter Weise eingeführt, aber gerade deshalb wird Voraussetzung 1. des LEHMANN—KÄLLÉN-Theorems auch hier erfüllt, und man muss befürchten, dass erneut Divergenzen auftreten.

### 4. Minardis bilokale Theorie

Diese Theorie [8] sieht zunächst der RAYSKISCHEN sehr ähnlich. Die beiden Autoren benutzen jedoch verschiedene Grundgleichungen für die Feldgrößen und verschiedene Nebenbedingungen für die 8 Komponenten des Ortsvektors, aber auch MINARDI schreibt alles explizit lorentzinvariant. Voraussetzung 1. des LEHMANN—KÄLLÉN-Theorems wird also auch hier nicht ausser Kraft gesetzt. In einem preprint MINARDIS aus dem Jahre 1959 (»The Connection between Masses and Isotopic Spin«) jedoch wird eine indefinite Metrik im Hilbertraum eingeführt, also Voraussetzung 3. des LEHMANN—KÄLLÉN-Theorems ausser Kraft gesetzt. Damit ist dieser Versuch allerdings dem in der Einführung zu dieser Arbeit genannten Einwand ausgesetzt.

### 5. Euklidische 4-dimensionale Welt

Neuerdings hat man bemerkt, dass alle beobachtbaren Grössen der konventionellen, lokalen Feldtheorie beim Übergang vom üblichen pseudo-euklidischen zu einem euklidischen 4-dimensionalen Raum-Zeit-Kontinuum der Ortsvektoren unverändert bleiben [9]. Das gab Anlass zu der Hoffnung, dass eine nichtlokale Feldtheorie in einem euklidischen 4-dimensionalen Kontinuum vernünftiger Eigenschaften habe als in einem Minkowski-Kontinuum. Denn im euklidischen Raum kann man endliche Gebiete invariant definieren, im Gegensatz zum pseudo-euklidischen Raum. Deshalb hoffte man, nichtlokale und akasale Effekte auf sehr kleine, endliche Gebiete wirklich beschränken zu können. Aber es ist nicht zu sehen, welche der Voraussetzungen des LEHMANN—KÄLLÉN-Theorems hierdurch ausser Kraft gesetzt würde, deshalb ist die eben genannte Hoffnung nach Meinung des Autors recht fragwürdig. Der Übergang zu einem euklidischen Kontinuum scheint nur ein mathematischer Kunstgriff ohne irgendwelche physikalische Konsequenzen zu sein.



## 6. Schönbergs Verallgemeinerung der Geometrie

SCHÖNBERG [10] bemüht sich um den Einbau einer kleinsten Länge in die Geometrie. Der Autor muss gestehen, dass er die Einzelheiten dieser Ansätze bisher leider nicht verstehen konnte. Klar ist jedoch, dass SCHÖNBERG versucht, einige in der Physik eine grosse Rolle spielende Felder nach dem Vorbild der Gravitation zu geometrisieren. Dieser Versuch ist aber nach Meinung des Autors sicher abwegig, weil die Zahl der verschiedenen Felder schon jetzt recht gross ist und höchstwahrscheinlich noch neue Felder hinzukommen.

## 7. Konsequenzen der Krümmung unserer Welt

Die allgemeine Relativitätstheorie lehrt uns bekanntlich, dass unsere Welt nicht eben, sondern (sehr schwach) gekrümmt ist und dass diese Krümmung, also die Metrik unserer Welt, durch die Massen (beziehungsweise Energien) erzeugt wird. Diese Krümmung der 4-dimensionalen Welt hebt Voraussetzung 1. des LEHMANN—KÄLLÉN-Theorems auf, denn eine gekrümmte Raum-Zeit-Mannigfaltigkeit weist keine Translationsvarianz mehr auf. Bei der Verschmelzung von Allgemeiner Relativitätstheorie und Quantentheorie hat man auch das zwangsläufige Auftreten einer »Abschneide-Vorschrift« für die sehr grossen Impulse zu erwarten. Aber erste Abschätzungen zeigen leider, dass der so erhältliche Abschneideradius viel, viel kleiner als der empirisch benötigte werden wird (nämlich etwa  $10^{-32}$  cm statt  $10^{-13}$ — $10^{-14}$  cm) [11]. Die konsequente Synthese von Allgemeiner Relativitätstheorie und Quantentheorie wird also höchstwahrscheinlich eine konvergente Feldtheorie erzeugen, aber die jetzt divergenten Feldmassen und Eigenladungen werden dann noch immer viel zu gross sein. Es muss also noch stärkere Divergenz-verhindernde Ursachen geben, nach denen man suchen sollte.

## 8. Tatis statistische Raum-Zeit

TATI [12] vermeidet den üblichen Minkowski-Raum als Basis der Feldtheorie überhaupt. Er führt primär für jedes Teilchen einen 4-dimensionalen Impulsraum ein mit dem üblichen Zusammenhang zwischen Energie und Impuls. Der makroskopische Ortsraum wird erst sekundär im Zusammenhang mit dem dynamischen Verhalten der Zustandsvektoren eingeführt und erhält dadurch wesentlich statistische Züge. In dieser Theorie gilt das LEHMANN—KÄLLÉN-Theorem sicher nicht, aber der Nachteil dieses Ansatzes ist, dass es sich um keine echte Feldtheorie handelt, weil ja für jedes Teilchen ein eigener Impulsraum eingeführt wird. Man geht also vom Teilchenstandpunkt aus und Verfasser ist nicht ganz sicher, ob die Welleneigenschaften der Materie ausreichend berücksichtigt sind. Insbesondere dürfte es schwierig sein, in diesem Formalismus Teilchenerzeugung und -Vernichtung zu beschreiben.



### 9. Coishs Verallgemeinerung der Geometrie

COISH schlägt eine sehr radikale Abänderung der Geometrie unserer Raum-Zeit-Welt vor [13]: Die möglichen Werte der Koordinaten der Punkte unserer Raum-Zeit-Welt sollen nicht den Körper der reellen Zahlen bilden, sondern nur einen *endlichen* Zahlen-Ring. Durch geeignete Wahl dieses Zahlenringes kann man erreichen, dass diese Geometrie für sehr kleine und sehr grosse Entfernungen entscheidend verändert wird, aber für mittlere Entfernungen sehr genähert mit der pseudoeuklidischen Geometrie übereinstimmt. In einer solchen Theorie sind natürlich infinitesimale Translationen nicht mehr wohldefiniert, deshalb entfällt Voraussetzung 1. des LEHMANN—KÄLLÉN-Theorems. Aber leider ist die Feldtheorie in einer solchen Geometrie noch nicht vollständig entwickelt. Besonders schwierig dürfte es sein, den Begriff des Differentials entsprechend zu fassen. Ein Nachteil dieses Ansatzes scheint dem Verfasser zu sein, dass der Übergang vom Körper der reellen Zahlen zu einem endlichen Zahlenring ein formaler Schritt ist, dessen physikalische Bedeutung nicht direkt zu erkennen ist.

### 10. Eigene Ansätze des Verfassers

In einer Reihe von Publikationen [14] hat der Autor Untersuchungen über die Grenzen des Feldbegriffs und deren Einbau in gewisse Feldtheorien angestellt. Diese Untersuchungen führen auch auf eine gewisse Modifikation der Geometrie unserer Welt. In der unter [14] zitierten Arbeit aus Acta Physica Polonica enthält der Anhang auch schon einen Hinweis darauf, dass und weshalb das LEHMANN—KÄLLÉN-Theorem im Rahmen der vom Autor angestrebten Theorie nicht gilt. Aber der dort gegebene Beweis ist nicht ganz sauber geführt; wir wollen deshalb diese Frage hier nochmals diskutieren.

Vom geometrischen Standpunkt aus ist ja der wesentliche Punkt in unserer Theorie die Einführung von 2 verschiedenen Räumen: Es ist streng zu unterscheiden zwischen dem  $\xi_v$ -Raum und dem  $y_v$ -Raum. Der  $y$ -Raum unserer Theorie hat mathematisch genau die Eigenschaften des konventionellen Minkowski-Kontinuums, aber physikalisch hat er keine direkte Bedeutung. Er geht durch einen Grenzübergang zum Kontinuum aus einem bestimmten System zur Durchnummerierung der Mannigfaltigkeit der zur Feldmessung verwendeten Probekörper hervor. Nur im korrespondenzmässigen Sinne hängen die  $y_v$  mit makroskopischen Vierer-Ortsvektoren zusammen.

Die Vierervektoren  $\xi_v(y)$  hingegen haben direkte physikalische Bedeutung: Sie repräsentieren diejenigen Weltpunkte, an denen die Probekörper zur Feldmessung verwendet werden, sind also die Koordinaten der Probekörper. Da unsere Probekörper Atomkerne oder ähnliche Gebilde sind, müssen die  $\xi_v(y)$  Operatoren sein, im Gegensatz zu den  $y_v$ . Diese  $\xi_v(y)$ -Operatoren spannen



also die wirkliche, physikalische Welt auf, in der sich das physikalische Geschehen abspielt.

Um die Korrespondenz zur konventionellen Theorie zu sichern, haben wir unsere Ansätze explizit kovariant gegenüber Lorentz-Transformationen im  $y$ -Raum formuliert. Nach dem NOETHER-Theorem muß es deshalb Vierervektoren  $\tilde{P}_\mu$  geben, die zeitlich konstant sind und das Verhalten der Observablen bei Translationen im  $y$ -Raum beherrschen. Weil aber der  $y$ -Raum nur ein fiktiver, mathematischer Hilfsraum ohne direkte physikalische Bedeutung ist, können die  $\tilde{P}_\mu$  nicht als Energie-Impuls des gesamten Feldes gedeutet werden. Also ist bezüglich der  $y$ -Translationen Voraussetzung 2. des LEHMANN—KÄLLÉN-Theorems nicht verwendbar.

Im physikalischen Raum, dem  $\xi_\nu(y)$ -Raum, kann man aber wegen des Operatorcharakters der  $\xi_\nu$  überhaupt keine strenge (für alle  $y$  gemeinsame!) Translation definieren. Es gibt also keine Invarianz der Theorie gegen physikalische, infinitesimale oder subatomare Translationen. Bei makroskopischen Translationen im  $\xi$ -Raum darf natürlich der Operator-Charakter der  $\xi_\nu$  praktisch keine Rolle mehr spielen; aber das ist für das LEHMAN—KÄLLÉN-Theorem unwesentlich, Voraussetzung 1. des Theorems gilt also in unserer Theorie nicht.

Diese Tatsache ist einerseits erfreulich, andererseits hat sie aber auch bedenkliche Konsequenzen:

1. In einer Theorie ohne strenge Translations-Invarianz gibt es auch keinen strengen Erhaltungssatz für den physikalischen Energie-Impuls  $P_\mu$ ! Immerhin kann man feststellen, dass bei Berücksichtigung der Krümmung unserer Welt sowieso keine strengen Erhaltungssätze für die  $P_\mu$  gelten. Es wird also der Näherungscharakter dieser Sätze durch unsere Überlegungen nur noch etwas stärker betont.\* Aber es ist schwer zu sagen, wie stark denn in Praxi numerisch die Abweichung von der Energie-Impuls-Erhaltung auf Grund unserer Theorie ist. Die Beantwortung dieser Frage ist natürlich entscheidend dafür, ob unsere Theorie mit irgendwelchen Experimenten in Konflikt kommt oder nicht. Verfasser hofft, später auf diesen Punkt genauer eingehen zu können.

2. Eine andere bedenkliche Konsequenz ist die folgende. Wegen der fehlenden Invarianz der Theorie gegenüber physikalischen Translationen kann natürlich die Relation

$$[P_\mu, \Phi(y)] = i \frac{\partial}{\partial y^\mu} \Phi(y)**$$

\* Übrigens können wir auch einen plausiblen physikalischen Grund für dieses stärkere Versagen der Erhaltungssätze angeben: Es ist die Einbeziehung der Proberkörper in den gesamten Formalismus und der zum Teil statistische Charakter des Austauschs von Energie und Impuls mit diesen Proberkörpern. Man hat ein System, das durchaus einem nicht abgeschlossenen System (der Mechanik zum Beispiel) ähnlich ist.

\*\*  $\Phi(y)$ : Feldgröße der Theorie.



nicht gelten. Hingegen sollte

$$[\tilde{P}_\mu, \Phi(y)] = i \frac{\partial}{\partial y^\mu} \Phi(y)$$

wirklich Gültigkeit haben. Die erstgenannte Relation ist aber eine der Voraussetzungen dafür, dass die Eigenzustände von  $P_\mu$  als Teilchenzustände charakterisiert werden können. Auch auf diese Schwierigkeit hoffen wir später zurückkommen zu können.

#### LITERATUR

1. H. LEHMANN, *Nuovo Cimento*, **II**, 342, 1954.
2. G. KÄLLÉN, *Helv. Phys. Acta*, **25**, 417, 1952.
3. S. MANDELSTAM, *Phys. Rev.*, **112**, 1344, 1958; **115**, 1741, 1752, 1959, u. a.
4. H. LEHMANN, K. SYMANZIK und W. ZIMMERMANN, *Nuovo Cimento*, **I**, 205, 1955; **6**, 319, 1957 und andere.
5. H.-P. DÜRR, W. HEISENBERG, H. MITTER, S. SCHLIEDER, K. YAMAZAKI, *Rev. Mod. Phys.*, **29**, 269, 1957; *Zs. Natf.*, **14a**, 441, 1959, u. a.
6. J. RZEWUSKI, *Bull. Acad. Pol. Sc.*, **VI**, 261, 1958; *Acta Phys. Pol.*, **XVIII**, 549, 1959, u. a.
7. J. RAYSKI, *Nuovo Cimento*, **2**, 255, 1955; **5**, 872, 1957, u. a.
8. E. MINARDI, *Nuovo Cimento*, **3**, 968, 1956; **4**, 1127, 1956, u. a.
9. J. SCHWINGER, *Proc. Nat. Acad. Sc.* **44**, 556, 1958; T. NAKANO, *Progr. Theor. Phys.*, **21**, 241, 1959; A. S. WIGHTMAN, *Phys. Rev.*, **101**, 860, 1956.
10. M. SCHÖNBERG, *Max-Planck-Festschrift 1958*, S. 321, u. a.
11. S. DESER, *Rev. Mod. Phys.*, **29**, 417, 1957, u. a.  
D. BOCHINZEW, preprint "Fluctuations of Space-Time Metric", Dubna 1960 (Im Druck in "Physikalische Abhandlungen aus der Sowjetunion").
12. T. TATI, *Progr. Theor. Phys.*, **18**, 235, 1957.
13. H. R. COISH, *Phys. Rev.*, **114**, 383, 1959.
14. G. HEBER, *Nuovo Cimento*, **7**, 677, 1958; **8**, 327, 1958; *Max-Planck-Festschrift 1958*, S. 345; *Nuovo Cimento*, **12**, 553, 1959; *Acta Phys. Pol.* **XVIII**, 581, 1959; *Wiss. Zs. der Univ. Jena, Jahrg.* **8**, 357, 1959; *Wiss. Zs. der Univ. Jena, Jahrg.* **9**, 455, 1960.

#### ТЕОРЕМА ЛЕМАНА—КЕЛЛЭНА И ГЕОМЕТРИЯ ПРОСТРАНСТВА МИНКОВСКОГО

Г. ГЕБЕР

Резюме

В работе обсуждается, возможно ли применение теоремы Лемана и Келлэна, касающейся сингулярностей функций распространения в теории поля, в недавно предложенной общей геометрии пространства—времени. Даются примеры для обоих случаев.





# FURTHER GAMMA-SPECTROSCOPIC INQUIRY INTO THE DECAY SCHEME OF $\text{Fe}^{59}$

By

T. SCHARBERT, D. BERÉNYI and GY. MÁTHÉ

INSTITUTE OF NUCLEAR RESEARCH OF THE HUNGARIAN ACADEMY OF SCIENCES, DEBRECEN

(Presented by A. Szalay. — Received 4. X. 1960)

The gamma-rays in the decay of  $\text{Fe}^{59}$  were examined by the sum-coincidence method. The measurements definitely confirm the existence of the 1.432 MeV level and the 143 as well as the 335 keV gamma-lines. It appears on the other hand that the 1.189, 1.458 and 1.479 MeV levels known from the  $(p, p')$  scattering are not involved in the decay of  $\text{Fe}^{59}$ . In the case of the 192—1097 keV cascade, the results of the preliminary angular correlation measurements differ from those reported by SCHIFF and METZGER.

## Introduction

In the summer of last year, the decay scheme of  $\text{Fe}^{59}$  was examined at this Institute. The necessity for the investigation was motivated by the fact that the reports in the literature on the beta-spectrum were not in agreement. While M. DEUTSCH et al. [1] and F. METZGER [2] found two beta groups of nearly identical intensity with 257 and 460 keV end-point energy, K. MANN and G. HANSON [3] could not demonstrate one of these groups. In order to clear up the question, the radiations of  $\text{Fe}^{59}$  were investigated by means of the beta-gamma-coincidence method, which in this case had not yet been applied. The results of measurement clearly showed that there were two beta-groups of  $275 \pm 5$  and  $455 \pm 5$  keV end-point energies in 44.6 and 55.4% ratios, respectively. These are in coincidence with the gamma-rays of 1.283 and 1.097 MeV energies, respectively. The details of these investigations were reported in the "Nuclear Physics" [4].

During last year, J. M. FERGUSON [5] also examined the decay scheme of  $\text{Fe}^{59}$  by scintillation gamma-coincidence spectroscopic methods. His results give rise to the supposition that the heretofore known decay scheme is supplemented by a new level of 1.439 MeV energy, which decays by emitting 143 or 335 keV gamma-rays through 1.283 or 1.097 MeV levels into the ground state (Fig. 1). FERGUSON's decay scheme represents also the levels obtained by BUECHNER et al. by means of  $(p, p')$  scattering.

The investigations reported here on the decay of  $\text{Fe}^{59}$  had the purpose of deciding through the sum-coincidence method [6] whether there were further transitions or incidental levels involved in the decay. The arrangement of the measuring apparatuses is shown in Fig. 2. (Regarding some experimental experiences on the HOOGENBOOM sum-coincidence method cf. [7].)



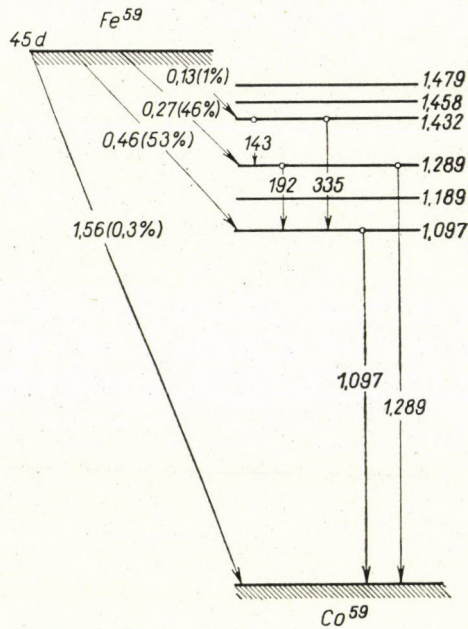


Fig. 1. The decay scheme of  $Fe^{59}$  [5]

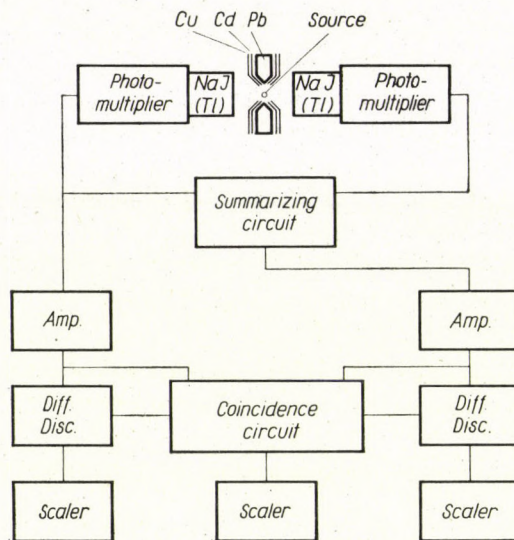


Fig. 2. Experimental arrangement

**Results and discussion**

In the first series of experiments the sum channel was differentially set at the energies of 1.097, 1.269 and 1.432 MeV and at the energies higher than 1.432 MeV successively, the latter being integral. The object was to find out

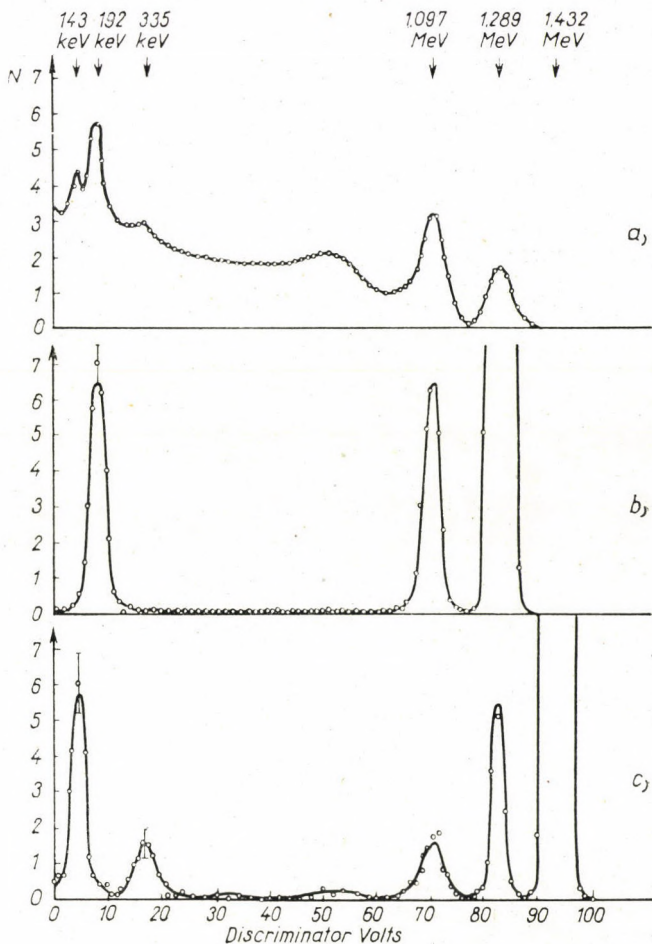


Fig. 3. Scintillation spectrum of Fe<sup>59</sup>

- a) Single spectrum
- Sum-coincidence spectrum when
- b) sum-channel setting is at 1.289 MeV
- c) sum-channel setting is at 1.43 MeV
- d) sum-channel setting is above 1.43 MeV

in this manner the sum of what cascade transitions yields the aforesaid energy values.



The setting at 1.097 MeV revealed — in accordance with past experiences — that only the transition into the ground state may exist in the case of this level.

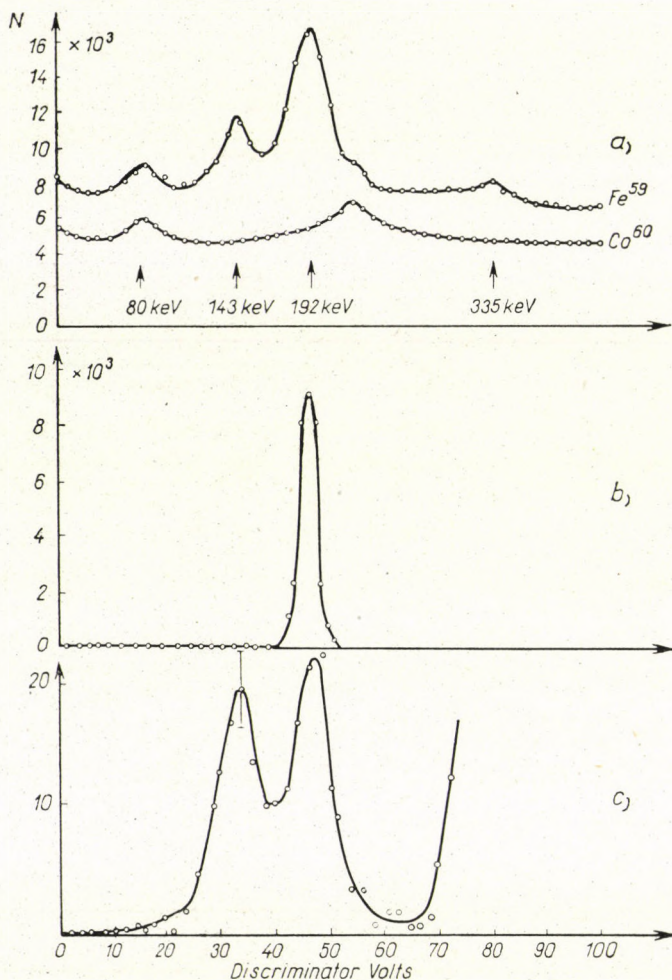


Fig. 4. The low energy region of  $Fe^{59}$

- a) Single spectrum (in comparison with the spectrum of  $Co^{60}$  in the low energy region) Sum coincidences, when
- b) sum-channel setting is at 192 keV
- c) sum-channel setting is at 335 KeV

The setting at 1.289 MeV yielded the spectrum to be seen in Fig. 3b. This clearly shows that the 1.289 MeV can be produced as a sum-energy only by the 192 keV in cascade with 1.097 MeV. The spectrum unequi-

vocally excludes the incidental existence of the 100 keV — 1.189 MeV cascade transition. The existence of the 100 keV — 92 keV — 1.097 MeV three-stage cascade is not shown by the spectrum either.

The setting at 1.432 MeV (Fig. 3c) reveals that the 1.432 MeV may arise as the sum of 143 keV and 1.289 MeV energies, and with lower intensity, as the sum of 335 and 1.097 MeV energies. Regarding the 1.189 MeV line, the spectrum again renders no positive answer.

The integral setting at energies higher than 1.432 MeV served the purpose of detecting every possible cascade transition yielding in sum total higher energies than 1.432 MeV. The coincidence spectrum revealed no line pointing to any cascade transition (Fig. 3d). Consequently, in the decay of  $\text{Fe}^{59}$ , there is no higher level excited at the 1.432 level of  $\text{Co}^{59}$ . At any rate, it could not be demonstrated even by such a sensitive method.

The second series of experiments had the aim to make a closer study of transitions of lower energy between 1.097 MeV and 1.432 MeV levels. The sum channel was set at 192 keV and 335 keV energies (Fig. 4).

The setting at 192 keV shows that this energy cannot be produced by any cascade whatever. The sum-coincidence spectrum reveals merely the full energy sum-peak, which means that the 1.289 MeV state does not decay through the 1.189 MeV level into the 1.097 MeV state. This measurement also proves that the occurrence of the 1.189 MeV level is very improbable in the decay of  $\text{Fe}^{59}$ . The spin value assigned in ( $p, p'$ ) scattering to the level in question also points to this fact.

Setting the sum channel at 335 keV energy two maxima were obtained at 143 and 192 keV. In consequence, in parallel with the 335 keV transition, the 143 and 192 keV cascade also may arise.

In Fig. 4, together with the single spectrum of  $\text{Fe}^{59}$  in the low energy region, that of  $\text{Co}^{60}$  also was plotted in the same region.

The scintillation spectrum of  $\text{Co}^{60}$  greatly resembles that of  $\text{Fe}^{59}$  as gamma-ray lines of high energy involved in the decay of both nuclides are of nearly identical intensities and energies. The comparison reveals that the maxima of 80 keV at low energies appear at the same spot in both spectra and they probably derive from the applied Pb absorbent. Likewise, in both spectra, an elevation appears at 210–220 keV, which can be ascribed to back scattering. In contrast, the 143 and 190 keV lines of  $\text{Fe}^{59}$  are missing in the case of  $\text{Co}^{60}$ .

Furthermore, preliminary investigations were made on the angular correlation of the 192 keV—1.092 MeV cascade transition. The results obtained differ from those reported by SCHIFF and METZGER [8] and point to the fact that the 192 keV and 1.097 MeV transitions are not of a clear M1 multipolarity. It must be noted that the aforementioned authors have produced energy discrimination by means of absorbents only and at the time of their measurement, the 143 and 335 keV gamma-ray lines were still unknown.



In summing up, it may be stated that the sum-coincidence method unquestionably proves the 1.432 MeV level to be excited in the decay of  $\text{Fe}^{59}$  and to decay with the 143 or 335 keV gamma-ray lines parallel into the 1.289 or 1.097 MeV levels. In contrast, in the decay of  $\text{Fe}^{59}$  the probability for the occurrence of the 1.189 MeV as well as for the 1.458 and 1.479 MeV levels is according to our measurements exceedingly slight.

We are greatly indebted to Prof. A. SZALAY for his valuable support. Thanks are due also to Dr. Cs. ÚJHELYI for the careful preparation of the sources.

#### REFERENCES

1. M. DEUTSCH, J. R. DOWING, L. G. ELLIOTT, J. W. IRWINE, JR. and A. ROBERTS. *Phys. Rev.*, **62**, 3, 1942.
2. F. METZGER, *Phys. Rev.*, **88**, 1360, 1952.
3. K. MANN and G. HANSON, *Phys. Rev.*, **83**, 893, 1951.
4. D. BERÉNYI, GY. MÁTHÉ and T. SCHARBERT, *Nuclear Physics*, **14**, 459, 1960.
5. J. M. FERGUSON, *Nuclear Physics*, **12**, 579, 1959.
6. A. M. HOOGENBOOM, *Nuclear Instruments*, **3**, 57, 1958.
7. D. BERÉNYI, T. SCHARBERT and GY. MÁTHÉ, *Acta Phys. Hung.*, to be published.
8. D. SCHIFF and F. METZGER, *Phys. Rev.*, **90**, 849, 1953.

#### ДАЛЬНЕЙШИЕ $\gamma$ -СПЕКТРОСКОПИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ СХЕМЫ РАСПАДА $\text{Fe}^{59}$

Т. ШАРБЕРТ, Д. БЕРЕНИ и Г. МАТЭ

#### Резюме

При распаде  $\text{Fe}^{59}$   $\gamma$ -лучи были исследованы способом суммированных совпадений. Измерения подтверждают существования уровня 1,432 Мэв и  $\gamma$ -линии с энергией 143 и 335 кэв в распаде  $\text{Fe}^{59}$ . С другой стороны выяснено, что уровни с энергией 1,189, 1,458, 1,479 Мэв, которые известны из рассеяния ( $p, p'$ ), не включены в распад  $\text{Fe}^{59}$ . Для каскада 192—1097 кэв результаты предварительных измерений угловой корреляции отличаются от результатов, которые были опубликованы Шиффом и Metzгером.



# О ВРЕМЕННОЙ ЗАВИСИМОСТИ НЕОБРАТИМЫХ ПРОЦЕССОВ В ГАЗЕ КНУДСЕНА

ДЬ. ПАТАКИ

ИНСТИТУТ ТЕХНИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ В. А. Н., БУДАПЕШТ

(Представлено Д. Сигети. — Поступило 13. X. 1960)

В работе было проанализировано временное протекание взаимодействия необратимых процессов в газе Кнудсена, с помощью двух параметров матрицы проводимости. Было исследовано изменение знака термодинамических сил [1], которое, в отличие от взаимодействия необратимых процессов Онзагера, связана не с тем, что матрица  $L$  не диагональна, а с тем, что матрица  $g \cdot L$  является не диагональной. Было найдено, что при стационарных начальных условиях изменение знака не происходит, но при нулевом начальном значении одной из сил изменение знака второй силы обычно происходит.

До последнего времени методами необратимой термодинамики были исследованы лишь стационарные процессы. И. Фэнеш показал [1], что временное протекание, т. е. спонтанные процессы выравнивания термодинамических систем с однородными подсистемами можно описывать с помощью интегрирования уравнений движения термодинамики, по крайней мере, вблизи равновесного состояния (Линейная теория). В то же время он указал на механизм процессов выравнивания, показывая, что компоненты силы  $X$  ( $X$ -вектор с одним столбцом) во время процессов выравнивания могут менять свой знак, так как (с обычными обозначениями) положительно определенная матрица  $A = g \cdot L$  является не диагональной. Видно, что изменение знака может появляться, вообще, и в том случае, если сама матрица  $L$  диагональна, значит, обычное взаимодействие необратимых процессов не имеет места, так как матрица  $g \cdot L$  не обязательно диагональна, если матрица  $L$  является диагональной.

В работе [2] Г. Фай и Г. Табори для случая двух переменных исследовали связь между изменением знака и начальными условиями.

Цель настоящей работы состоит в том, чтобы исследовать временное протекание одного известного взаимодействия необратимых процессов методом интегрирования уравнений движения. Для этой цели мы выбрали процессы, протекающие в газе Кнудсена. В случае этого эффекта, как известно, имеется два сосуда с идеальным газом, соединенных между собой капилляром. Предполагается, что диаметр капилляра меньше длины свободного пробега молекул. Если газы имеют разные температуры, но одинаковые давления, возникает перенос вещества и появляется разность давлений. При помощи теории Онзагера, в стационарном случае можно по-



лучить соотношение между  $\Delta P$  и  $\Delta T$ , которое соединяет термомеханический эффект и термомолекулярную разность давлений [3], [4].

Процессы описываются следующими уравнениями [3]

$$J_m = L_{mm} X_m + L_{mu} X_u, \quad (1)$$

$$J_u = L_{um} X_m + L_{uu} X_u, \quad (2)$$

где  $J_m$  — ток вещества,  $J_u$  — ток энергии,

$$X_m = \Delta \left( -\frac{\mu}{T} \right); \quad X_u = \Delta \left( \frac{1}{T} \right). \quad (3)$$

$L_{ik}$  — элементы симметричной матрицы проводимости,  $\mu$  — химический потенциал.

В случае  $\Delta T = 0$  для уравнения, описывающего термомеханический эффект, получаем:

$$J_u = \frac{L_{um}}{L_{mm}} J_m \equiv U^* J_m \quad (4)$$

и, так как  $X_m$  и  $X_u$  можно разложить, получаются следующие уравнения

$$J_m = -\frac{L_{mm} v}{T} \Delta P + \frac{L_{mm} h - L_{mu}}{T^2} \Delta T,$$

$$J_u = -\frac{L_{um} v}{T} \Delta P + \frac{L_{um} h - L_{uu}}{T^2} \Delta T,$$

где  $v$  — удельный объем и  $h$  — удельная энтальпия. Это показывает, что в случае  $\Delta T = 0$  разность давлений  $\Delta P$  ведет к переносу энергии по уравнению (4).  $U^*$  представляет собой «транспорт энергии», т. е. энергию на единицу тока вещества. Другой эффект представляет собой стационарное состояние, когда  $J_m = 0$ , но  $J_u \neq 0$ . В этом случае  $\Delta P$  и  $\Delta T$  тоже отличаются от нуля. На основе кинетической теории газов можно показать [3], что в случае газа Кнудсена, если диаметр капилляра меньше длины свободного пробега молекул, имеет место соотношение:

$$U^* = \frac{L_{um}}{L_{mm}} = \frac{2kT}{M_0}, \quad (5)$$

где  $M_0$  — молекулярный вес. Тогда для термомолекулярной разности давлений и для разности температур получается ( $J_m = 0$ )

$$\frac{\Delta P}{\Delta T} = \frac{1}{2} \frac{k}{M_0 v}.$$

Соотношение (5) дает возможность написать матрицу проводимости с помощью всего двух параметров.

Интегрирование уравнений движения можно выполнить следующим образом. В уравнении проводимости:

$$J = LX \quad (6)$$

сила  $X$  определяется уравнением

$$X = -ga, \quad (7)$$

где  $a$  — матрица с одним столбцом, образованная из отклонений экстенсивных переменных от их равновесных значений. Элементы матрицы  $g$ :

$$g_{ik} = -\frac{\partial^2 S}{\partial a_i \partial a_k}. \quad (8)$$

$g$  — симметричная матрица, полученная от энтропии  $S(a_1, a_2, \dots)$ . Соотношение между током и  $a$  дается уравнением:

$$\dot{a} \equiv J. \quad (9)$$

Продифференцируя уравнение (7) по времени и используя уравнения (6) и (9), можно привести (7) к следующему виду:

$$\dot{X} = -g LX. \quad (10)$$

Это линейное дифференциальное уравнение первого порядка считается уравнением движения термодинамики.

В случае двух переменных для компонентов получаем дифференциальное уравнение второго порядка:

$$\ddot{X}_i + T(A)\dot{X}_i + D(A)X_i = 0, \quad (i = m, u) \quad (11)$$

где  $T(A)$  — след матрицы  $A$ ,  $D(A)$  — ее детерминант. Видно, что обе силы описываются с одним и тем же уравнением. Только начальные условия будут отличны. Соответствующее характеристическое уравнение:

$$\lambda^2 + T(A)\lambda + D(A) = 0 \quad (12)$$

итак, решение имеет вид:

$$X_i(t) = A_i e^{\lambda_1 t} + B_i e^{\lambda_2 t}, \quad (i = m, u)$$

где  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  два корня характеристического уравнения. Величины  $A_i$  и  $B_i$  определяются из начальных условий.



Из вышесказанного видно, что для решения проблемы должны определиться матрицы  $L$  и  $g$ . Матрицу  $L$  при помощи соотношения взаимности Онзагера ( $L_{ik} = L_{ki}$ ,  $k \neq i$ ) и уравнения (5) можно привести к следующему виду:

$$L = \begin{pmatrix} L_{mm} & L_{mu} \\ L_{um} & L_{uu} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{M_0 L_0}{2kT} L_0 \\ L_0 & L_{uu} \end{pmatrix}, \quad (13)$$

где введено обозначение  $L_{mu} = L_{um} = L_0$ .

Для определения матрицы  $g$  исходим из функции  $S(m, U)$  (см. например, [5]).

$$S(m, U) = \frac{m}{M_0} k \ln \frac{eVM_0}{m} + \frac{m}{M_0} c_v \ln \frac{kUM_0}{mc_v} + \frac{m}{M_0} (k\zeta + c_v), \quad (14)$$

где  $m$  — масса газа;  $V$  — его объем;  $c_v = \frac{3}{2}k$  — удельная теплоемкость;  $e$  — основание натурального логарифма;  $\zeta$  — химическая постоянная газа. На основе (14) матрицу  $g$  можно определить\*:

$$g = \begin{pmatrix} g_{mm} & g_{mu} \\ g_{um} & g_{uu} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{5k}{2m M_0} & -\frac{1}{mT} \\ -\frac{1}{mT} & \frac{2M_0}{3m kT^2} \end{pmatrix} \quad (15)$$

зная  $g$  и  $L$ , матрицу  $A = gL$  можно определить путем простых вычислений:

$$A = gL = \begin{pmatrix} A_{mm} & A_{mu} \\ A_{um} & A_{uu} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{L_0}{4mT}; \frac{5k L_0}{2m M_0} - \frac{L_{uu}}{mT} \\ \frac{1}{6} \frac{M_0 L_0}{m k T^2}; -\frac{L_0}{mT^2} + \frac{2M_0 L_{uu}}{3m k T^2} \end{pmatrix}; \quad (16)$$

Теперь вычисляем величины  $T(A)$  и  $D(A)$ , фигурирующие в характеристическом уравнении.

$$\left. \begin{aligned} T(A) &= \frac{3}{4} \frac{1}{\tau} \left( \frac{8}{9} \alpha - 1 \right), \\ D(A) &= \frac{2}{3} \frac{1}{\tau^2} \left( \frac{1}{2} \alpha - 1 \right), \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

\* В том случае, если один из сосудов гораздо меньше другого  $g$  относится к меньшему сосуду.

Если размеры соизмеримы, тогда  $g$  относится к целой системе сосудов.

где мы ввели обозначения:

$$\alpha = \frac{M_0 L_{uu}}{kTL_0}; \quad \frac{1}{\tau} = \frac{L_0}{mT}.$$

Так как  $A$  положительно определенная матрица, можно написать:

$$\tau > 0, \quad \alpha > 2. \quad (18)$$

В дальнейшем мы пользуемся этими неравенствами для анализа временного протекания процессов.

При помощи значений следа и детерминанта, полученных из уравнения (17), корни характеристического уравнения имеют следующий вид:

$$\lambda_{1/2} = -\frac{3}{8} \frac{1}{\tau} \left( \frac{8}{9} \alpha - 1 \right) \left[ 1 \mp \sqrt{1 - \frac{128}{27} \frac{\left( \frac{1}{2} \alpha - 1 \right)}{\left( \frac{8}{9} \alpha - 1 \right)^2}} \right]. \quad (19)$$

$\lambda_1$  и  $\lambda_2$  являются отрицательными величинами (из-за (18)) и очевидно  $|\lambda_1| < |\lambda_2|$ .

В дальнейшем рассматриваются два случая:

а) В качестве начального условия мы возьмем стационарное состояние  $J_{m0} = 0$ .

б) Исследуем временную зависимость сил при начальных условиях  $X_{m0} = 0, X_{u0} > 0$ .

В обоих случаях мы исследуем возможность возникновения изменения знака сил.

а) Условие стационарности

$$J_{m0} = \frac{M_0 L_0}{2kT} X_{m0} + L_0 X_{u0} = 0,$$

откуда получается соотношение между начальными значениями  $X_{m0}$  и  $X_{u0}$ :

$$\frac{X_{m0}}{X_{u0}} = -\frac{2kT}{M_0}. \quad (20)$$

Видно, что эти величины имеют разные знаки.

Определение  $\dot{X}_{m0}$  и  $\dot{X}_{u0}$  возможно на основе уравнения  $\dot{X} = -gJ$ , принимая во внимание условие  $J_{m0} = 0$ .



Простой расчет показывает:

$$\dot{X}_{m0} = -\frac{1}{\tau} \left( \frac{1}{2} \alpha - 1 \right) X_{m0}, \quad (21)$$

$$\dot{X}_{u0} = -\frac{4}{3} \frac{1}{\tau} \left( \frac{1}{2} \alpha - 1 \right) X_{u0}, \quad (22)$$

где мы воспользовались уравнением (20).

Система уравнений для определения  $A_u$  и  $B_u$ , на основании предыдущих, имеет вид:

$$A_u + B_u = X_{u0}, \quad (23)$$

$$A_u \lambda_1 + B_u \lambda_2 = \dot{X}_{u0} = -\frac{4}{3} \frac{1}{\tau} \left( \frac{1}{2} \alpha - 1 \right) X_{u0}. \quad (24)$$

Аналогично получаем для  $A_m$  и  $B_m$ :

$$A_m + B_m = X_{m0},$$

$$A_m \lambda_1 + B_m \lambda_2 = \dot{X}_{m0} = -\frac{1}{\tau} \left( \frac{1}{2} \alpha - 1 \right) X_{m0}.$$

Эти две системы уравнений имеют один и тот же вид. Рассмотрим, например, уравнения для  $A_u$  и  $B_u$ . Решение может быть написано просто:

$$A_u = -\left[ \frac{4}{3} \frac{1}{\tau} \left( \frac{1}{2} \alpha - 1 \right) + \lambda_2 \right] \frac{X_{u0}}{\lambda_1 - \lambda_2};$$

$$B_u = \left[ \frac{4}{3} \frac{1}{\tau} \left( \frac{1}{2} \alpha - 1 \right) + \lambda_1 \right] \frac{X_{u0}}{\lambda_1 - \lambda_2}.$$

Отсюда, используя уравнение (19) для определения величины  $\lambda_1 + \lambda_2$  и  $\lambda_1 - \lambda_2$ , получаем

$$B_u - A_u = K(\alpha) X_{u0}, \quad (25)$$

где была введена функция  $K(\alpha)$ :

$$K(\alpha) = \frac{\alpha - \frac{23}{8}}{\sqrt{\alpha^2 - \frac{21}{4} \alpha + \frac{465}{64}}}. \quad (26)$$

На основе уравнений (23) и (25) можно написать:

$$A_u = \frac{1 - K(\alpha)}{2} X_{u0},$$

$$B_u = \frac{1 + K(\alpha)}{2} X_{u0}.$$

Для того, чтобы сила  $X_u$  меняла свой знак, необходимо, чтобы были  $A_u < 0$  и  $B_u > 0$  и, в случае  $X_{u0} > 0$  и  $|\lambda_1| < |\lambda_2|$ , условие  $|A_u| < |B_u|$  было выполнено, так как в этом случае существует такой момент времени  $t_k$ , когда уравнение,

$$X_u(t_k) = A_u e^{\lambda_1 t_k} + B_u e^{\lambda_2 t_k} = 0$$

имеет решение. Но для этого необходимо, чтобы было  $K(\alpha) > 1$ . Это выполняется на основе (26) только в том случае, если  $\alpha < 2$ . Однако, это про-

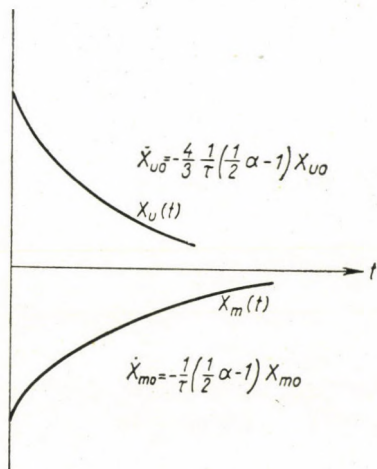


Рис. 1

тиворечит второму неравенству (18), которое мы получили из условия, что матрица  $A$  является положительно определенной.

Аналогично можно провести расчеты и для  $X_m(t)$ .

Получается, что силы  $X_m(t)$  и  $X_u(t)$  убывают по отношению к своим начальным значениям с разными знаками без изменения знака (рис. 1).

б) Во втором случае начальные условия были выбраны так, чтобы одна из сил была равна нулю (например,  $X_{m0} = 0$ ). Расчеты можно провести аналогично предыдущим. Для простоты мы обозначаем неизвестные параметры опять через  $A_u, B_u$  и  $A_m, B_m$ . Для величин  $A_u$  и  $B_u$  имеет место следующая система уравнений:

$$A_u + B_u = X_{u0},$$

$$A_u \lambda_1 + B_u \lambda_2 = \dot{X}_{u0} = -\frac{1}{\tau} \left( \frac{2}{3} \alpha - 1 \right) X_{u0},$$

где  $\dot{X}_{u0}$  (и  $\dot{X}_{m0}$ ) можно определить на основании следующего уравнения:

$$\begin{pmatrix} \dot{X}_{m0} \\ \dot{X}_{u0} \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} A_{mm} & A_{mu} \\ A_{um} & A_{uu} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ X_{u0} \end{pmatrix}.$$



Откуда получаем для  $A_u$  и  $B_u$

$$A_u = \frac{1 - K(\alpha)}{2} X_{u0},$$

$$B_u = \frac{1 + K(\alpha)}{2} X_{u0},$$

где  $K(\alpha)$ :

$$K(\alpha) = \frac{\alpha - \frac{15}{8}}{\sqrt{\alpha^2 - \frac{21}{4}\alpha + \frac{465}{64}}}.$$

Из условия  $K(\alpha) > 1$  получается условие

$$\alpha > \frac{5}{2}. \quad (27)$$

Это уже не противоречит тому, что матрица  $A$  является положительно определенной. Значит,  $X_u(t)$  начинает уменьшаться от своего положитель-

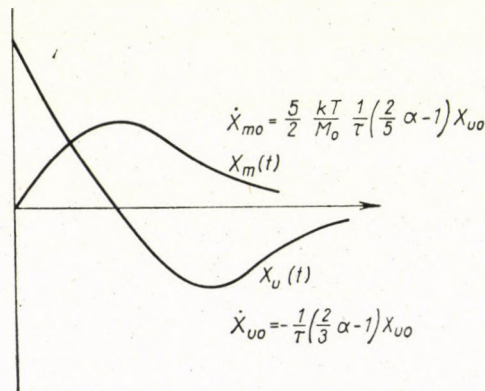


Рис. 2

ного значения и проходит через нуль (меняет свой знак). При  $t \rightarrow \infty$   $X_u(t)$  стремится к нулю (рис. 2).  $X_m(t)$  не меняет своего знака, потому что в решении

$$X_m(t) = A_m e^{\lambda_1 t} + B_m e^{\lambda_2 t}.$$

$B_m = -A_m$  из-за начального условия, то есть:

$$X_m(t) = A_m (e^{\lambda_1 t} - e^{\lambda_2 t}).$$

В момент  $t = 0$  направление и величина изменения определяются  $\dot{X}_{m0}$ . Не трудно видеть, что:

$$\dot{X}_{m0} = \frac{5kT}{2M_0} \frac{1}{\tau} \left( \frac{2}{5} \alpha - 1 \right) X_{u0},$$

то есть, если  $\alpha > \frac{5}{2}$  (что совпадает с условием (27))  $\dot{X}_{m0}$  имеет такой же знак как  $X_{i0}$ , поэтому осуществляется в самом деле случай, представленный на рис. 2. Это совпадает со случаем 1/с, исследованным в работе [2].

Вышесказанное можно кратко изложить нижеследующим образом. Нами было исследовано с помощью двух параметров временное протекание взаимодействия необратимых процессов, определенных уравнениями (1) и (2). В случае стационарного начального условия силы, исходя из своих начальных значений разного знака, убывают без изменения знака. Этим указано на новый, по сравнению с работой [2], вид убывания сил.

Во втором случае, принимая начальную величину одной из сил за нуль, вторая сила меняет свой знак при выравнивании. Неизвестные параметры матрицы  $L$  можно было бы экспериментально определить как раз путем исследования временных явлений, используя факт изменения знака (исчезновения) сил  $X_i$ . Затруднение состоит в том, что силы  $X_i$ , вообще говоря, невозможно определить путем непосредственных измерений. Описанный выше метод, соответствующими изменениями, может быть применен и для случая термодиффузии.

В заключение, автор выражает свою благодарность проф. И. Фэнешу за постоянный интерес к работе и критические замечания.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. I. FÉNYES, Acta Phys. Hung., **II**, 131 1960.
2. G. FÁY und G. TÁBORI, Acta Phys. Hung., **10**, 129, 1959.
3. S. R. DE GROOT, Thermodynamics of Irreversible Processes, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1952.
4. I. PRIGOCINE, Introduction to Thermodynamics of Irreversible Processes [русское издание], ИЛ, Москва, 1960.
5. Л. Ландау и Е. Лифшиц, Статистическая физика, Гостехиздат, Москва, 1951.

#### ON THE TIME DEPENDENCE OF IRREVERSIBLE PROCESSES IN KNUDSEN GAS

By

G. PATAKI

#### Abstract

In the paper presented here we discuss the time dependence of cross-effects (irreversible processes) in the Knudsen gas by means of two parameters of the conduction matrix. We examined the reversal of sign of thermodynamic forces [1] and found it really — in contrast to ONSAGER's cross-effect — to be connected with the  $g \cdot L$  matrix and not the  $L$  matrix being off-diagonal. We found that the reversal of sign of the forces does not occur with a stationary initial condition, whilst in case of zero initial value of one of the forces the other generally reverses its sign.





# ÜBER PHASENOPERATOREN IN DER STRALUNGSTHEORIE

Von

F. KÁROLYHÁZY

INSTITUT FÜR THEORETISCHE PHYSIK DER ROLAND EÖTVÖS UNIVERSITÄT, BUDAPEST

(Vorgelegt von K. F. Novobátzky. — Eingegangen: 12. X. 1960)

Die Interferenz von Lichtquanten, die zu verschiedenen Partialwellen gehören, wird an einem einfachen Beispiel mit Hilfe der Phasenoperatoren diskutiert.

## I

Das Problem, das im folgenden behandelt wird, ist eigentlich von didaktischer Art. Beim Lernen der Quantenelektrodynamik bereitet das Verstehen der Behauptung: »Das Photon interferiert nur mit sich selbst, verschiedene Photonen interferieren nie« manche Schwierigkeiten. Diese entstehen etwa in der folgenden Weise.

1. Dafür, dass die Wellen von zwei Strahlungsquellen, z. B. von zwei strahlenden Atomen oder zwei Antennen, eine bemerkbare Interferenzerscheinung hervorrufen können, ist die Erfüllung der sogenannten Kohärenzbedingungen nötig. Als Beispiel erwähnen wir eine Metaldampf Lampe, hier wird das Licht durch die einzelnen Atome in unregelmässigen Zeitintervallen in Form endlicher Wellenzüge emittiert. Dagegen fordern die Kohärenzbedingungen eben, dass in Raumpunkten, in denen man die Interferenz nachprüfen will, die Phasendifferenz der ankommenden Wellen stets dieselbe sei. Daher muss man immer das Licht einer und derselben Lichtquelle zuerst in zwei Teile spalten, und nachher die Teile wieder vereinigen, um Interferenz zu erhalten. Dies wird durch die Erfahrung bestätigt. Die Experimente zeigen sogleich, dass der Charakter des Interferenzbildes (die relative Intensitätsverteilung) von der Intensität der Lichtquelle unabhängig ist, es bleibt also auch dann unverändert, wenn die »Photonen« nur noch einzeln aus der Lichtquelle »heraustropfen«. Zusammenfassend kann man feststellen, dass das Photon nur mit sich selbst interferiert. In der Quantenelektrodynamik drückt man das präziser so aus: Das Vorhandensein eines Photons bedeutet nichts anderes als dass eine der Besetzungszahlen, die zu den verschiedenen Partialwellen bei der Zerlegung der Potentiale gehören, von Null verschieden ist. Die Emission oder Absorption eines Photons bewirkt das Auftreten oder Verschwinden eines Quants, das Interferenzbild ist in der betreffenden Partialwelle selbst enthalten.



2. Wir bemerken aber, dass die Wellen zweier monochromatisch, mit der gleichen Frequenz strahlenden Antennen in der klassischen Theorie jedenfalls interferieren. Praktisch musste man jedoch auch noch vor einigen Jahren, um die streng gleiche Frequenz zu sichern, die beiden Antennen gemeinsam steuern. So konnte man die beiden als eine einzige »Richtungsantenne« betrachten. Beim heutigen Grade der Stabilität ist aber die Interferenz auch zwischen unabhängigen Antennen gleicher Frequenz nachweisbar. Wie soll man die Terminologie diesem Effekt anpassen? Das Festhalten an solchen Partialwellen, die das Interferenzbild schon in sich enthalten, ist natürlich auch weiterhin erlaubt. Wollen wir aber in den Photonen etwas, — wenn auch noch so wenig — Anschauliches sehen, so wird auch der Anspruch auf eine solche Beschreibung berechtigt sein, bei der unabhängige Quellen unabhängige, verschiedene Photonen emittieren, d. h. solche Besetzungszahlen verändern, die zu verschiedenen Partialwellen gehören. In diesem Sinne nehmen dann in der Interferenz verschiedene Photonen teil.

Näher ausgeführt: ist im Raume nur eine einzige, einfache Antenne am Ort  $P$  vorhanden, so sind in der orthogonalen Entwicklung des Vektorpotentials

$$A = \sum_{\lambda} [q_{\lambda}(t) A_{\lambda}(r) + q_{\lambda}^*(t) A_{\lambda}^*(r)] \quad (1)$$

z. B. ebene oder Kugelwellen (mit  $P$  als Zentrum) zur Beschreibung der ausströmenden Strahlung gleich wohl geeignet. Dem Problem der zwei unabhängigen Antennen (am Orte  $P_1$  bzw.  $P_2$ ) passen wir uns an, indem wir zwei Gruppen der Partialwellen einführen und setzen:

$$A = \sum_{\lambda} \left[ q_{\lambda}^1(t) A_{\lambda}^1(r) + q_{\lambda}^{*1}(t) A_{\lambda}^{*1}(r) + p_{\lambda}^2(t) A_{\lambda}^2(r) + q_{\lambda}^{*2}(t) A_{\lambda}^{*2}(r) \right], \quad (1')$$

wobei jede Gruppe, für sich betrachtet, dem System der Kugelwellen, mit  $P_1$  bzw.  $P_2$  als Zentrum ähnlich ist. Mit der exakten Form dieser Wellen sowie mit Orthogonalitätsfragen wollen wir uns nicht beschäftigen, da wir uns später auf nur je eine Welle der zwei Gruppen beschränken werden. Das Entstehen der Interferenz wird dann durch die Betrachtung der Phasen klar, wie im Abschnitt II gezeigt wird.

## II

Wir verwenden Wechselwirkungsrepresentation.

Für die Eichung wählen wir das Coulombsche ( $\text{div } A = 0$ ) Feld, die elektrische Feldstärke wird dann in der Wellenzone einfach durch  $E = \frac{1}{c} \dot{A}$  dargestellt. Das klassische Interferenzbild ergibt sich bei der Berechnung der Erwartungswerte von  $E$  oder  $E^2$  als Funktion des Ortes.

Bei der Quantisierung von  $A$  fordern wir natürlich

$$q_\lambda q_\lambda^* - q_\lambda^* q_\lambda = \frac{\hbar}{2\nu_\lambda}, \tag{1a}$$

d. h. in unserem Falle (wenn  $i, k = 1, 2$ )

$$q_\lambda^i q_\mu^k - q_\mu^k q_\lambda^i = \frac{\hbar}{2\nu_\lambda} \delta_{\mu\lambda} \delta_{ik}. \tag{1b}$$

Bekanntlich [1] wird dann z. B.  $q_\lambda^1$ , bezogen auf die Quantenzahl  $n_\lambda^1$ , die also zur ersten Antenne mit den Index  $\lambda$  gehört, durch die Matrix

$$q_\lambda^1 = \sqrt{\frac{\hbar}{2\nu_\lambda}} \begin{bmatrix} 0 & \sqrt{1} & 0 & 0 & \dots \\ 0 & 0 & \sqrt{2} & 0 & \dots \\ 0 & 0 & 0 & \sqrt{3} & \dots \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \end{bmatrix} e^{-i\nu_\lambda t}, \tag{2}$$

bzw.

$$q_\lambda^{1*} = \sqrt{\frac{\hbar}{2\nu_\lambda}} \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \dots \\ \sqrt{1} & 0 & 0 & 0 & \dots \\ 0 & \sqrt{2} & 0 & 0 & \dots \\ 0 & 0 & \sqrt{3} & 0 & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \end{bmatrix} e^{i\nu_\lambda t} \tag{2}$$

gegeben. Für die anderen Quantenzahlen entspricht  $q_\lambda^i$  der Einheitsmatrix. Weiterhin ist

$$H = \sum_\lambda (\overset{1}{H}_\lambda + \overset{2}{H}_\lambda), \quad \overset{i}{H}_\lambda = \nu_\lambda^2 (q_\lambda^i q_\lambda^* + q_\lambda^* q_\lambda^i). \tag{3}$$

$\overset{i}{H}_\lambda$  ist diagonal mit den Eigenwerten  $(n_\lambda^i + \frac{1}{2}) \hbar \nu_\lambda$  und kann daher auch in der Form

$$\overset{i}{H}_\lambda = (N_\lambda^i + \frac{1}{2}) \hbar \nu_\lambda \tag{4}$$

geschrieben werden, wo  $N_\lambda^i$  der Operator der Photonenzahl ist.



Man kann nun vom Operator  $q$  bzw.  $q^*$  (die Indizes vorläufig unterdrückend) einen als Phasenoperator bezeichneten Faktor abspalten und setzen:

$$q = \varphi \cdot C = \sqrt{\frac{\hbar}{2\nu}} \varphi \cdot \sqrt{N}, \quad q^* = C \cdot \varphi^* = \sqrt{\frac{\hbar}{2\nu}} \sqrt{N} \varphi^*. \quad (5)$$

Dazu wird man am einfachsten auf folgende Weise geführt. In der klassischen Theorie schreibt man

$$q = e^{-i\nu t} |q| = e^{i\Phi} |q| = \varphi |q|, \quad q^* = |q| e^{i\nu t} = |q| e^{i\Phi} = |q| \varphi^*, \quad \ddot{\varphi} + \nu^2 \varphi = 0,$$

so dass die Zeitabhängigkeit im Phasenfaktor enthalten ist. In der Quantenmechanik definiert man  $\hat{\Omega}$  zum Operator  $\Omega$  durch  $\hat{\Omega} = \frac{i}{\hbar} [H, \Omega]$ . Die Zerlegung (2) des Operators  $q$  in einen zeitabhängigen Faktor ( $e^{-i\nu t}$ ) und einen zeitunabhängigen entspricht dieser Regel nicht. Wir gehen konsequenter so vor, dass wir auch hier

$$q = \varphi C, \quad q^* = C \varphi^* \quad (6)$$

zu setzen versuchen, wo

$$\dot{C} = \frac{i}{\hbar} [H, C] = 0 \quad \text{und} \quad \ddot{\varphi} = \frac{i}{\hbar} \left[ H, \frac{i}{\hbar} [H, \varphi] \right] = -\nu^2 \varphi. \quad (7)$$

Es ist also  $\varphi$  der dem klassischen Phasenfaktor  $e^{i\Phi}$  zugeordnete Operator.  $C$  entspricht dem klassischen  $|q|$ . Man bestimmt  $C$ , indem man die  $q$  von (4) unter Verwendung von (1) in (2) einsetzt. Es ist nämlich  $H = 2\nu C + \frac{1}{2} \hbar \nu$ , was durch Vergleich mit (4) zu (5) führt. (Wir haben ausgenutzt, dass  $\varphi \varphi^* = 1$ , was sofort gezeigt wird.)

In der Literatur findet man im allgemeinen diese Zerlegung von  $q$  mit  $e^{i\Phi}$  an der Stelle von  $\varphi$ . Geht man damit in (1) ein, und schreibt  $e^{-i\Phi} e^{i\Phi} = 1$ , so kommt man auf die Relation  $e^{i\Phi} N - N e^{i\Phi} = e^{i\Phi}$ . Diese wird erfüllt, wenn  $\Phi$  und  $N$  der Vertauschungsrelation

$$\Phi N - N \Phi = -i \quad (8)$$

genügen. Die Folgen dieser Vertauschungsregel können aber nicht explicit veranschaulicht werden. Da nämlich der Operator  $N$  auf Hauptachsen transformierbar ist und ein diskretes Eigenwertspektrum hat, kann man keinen Matrixoperator  $\varphi$  finden, der (8) genügt. (Aus (8) folgt ein kontinuierliches Spektrum.)

Wir ordnen also nur den klassischen Phasenfaktoren  $e^{i\Phi}$  bzw.  $e^{-i\Phi}$  im Ganzen die Operatoren  $\varphi$  bzw.  $\varphi^*$  zu. Diese haben dann mit (5) und (2) die Gestalt

$$\varphi = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 & - & - \\ 0 & 0 & 1 & 0 & - & - \\ 0 & 0 & 0 & 1 & - & - \\ - & - & - & - & - & - \end{pmatrix} e^{-i\vartheta t}, \quad \varphi^* = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & - & - \\ 1 & 0 & 0 & 0 & - & - \\ 0 & 1 & 0 & 0 & - & - \\ - & - & - & - & - & - \end{pmatrix} e^{i\vartheta t}. \quad (9)$$

Es ist also  $\varphi\varphi^* = 1$ ,  $\varphi^*\varphi = 1 - \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & - & - \\ 0 & 0 & 0 & 0 & - & - \\ 0 & 0 & 0 & 0 & - & - \\ - & - & - & - & - & - \end{pmatrix}$ . Aus (1) ergibt sich (wir schreiben die Indices wieder aus)

$$\varphi_{\lambda}^i N_{\lambda}^i - N_{\lambda}^i \varphi_{\lambda}^i = \varphi_{\lambda}^i. \quad (10)$$

Jetzt wenden wir uns unserem eigentlichen Problem zu. Es sei  $a$  der Zustandsvektor des Strahlungsfeldes, mit den Komponenten  $a_{n_1, n_1}^1 \dots a_{n_2, n_2}^2 \dots$ . Zur Vereinfachung der Rechnung vereinbaren wir, dass beide Antennen monochromatisch mit einer bestimmten Frequenz  $\nu_{\lambda_0}$  schwingen. Wir nehmen daher an (ohne dass wir uns um die konkrete Form der Wechselwirkung zwischen Antenne und Feld kümmern), dass durch die erste Antenne einzig der virtuelle Oszillator  $A_{\lambda_0}^1$  des Feldes erregt wird, durch die zweite nur  $A_{\lambda_0}^2$ . Dementsprechend werden wir die Komponenten des Zustandvektors einfach mit  $a_{ik}$  bezeichnen, wo also  $i$  und  $k$  die möglichen Werte von  $n_{\lambda_0}^1$  bzw.  $n_{\lambda_0}^2$  sind.

In der gleichen Weise lassen wir im Ausdruck der elektrischen Feldstärke  $E$  die Glieder fort, die uns nicht interessieren und schreiben (auch der Index  $\lambda_0$  wird weggelassen):

$$E = -\frac{1}{c} \left\{ q A^1 + q^* A^{*1} + q A^2 + q^* A^{*2} \right\}. \quad (11)$$

Kennen wir einen Operator  $\Omega^1$  bzw.  $\Omega^2$  in der Matrixform  $(\omega_{ik}^1)$  bzw.  $(\omega_{ik}^2)$ , so können wir diesen leicht auf den Zustandsvektor  $a$  anwenden

$$(\Omega^1 a)_{ik} = \omega_{il}^1 a_{lk}, \quad \text{bzw.} \quad (\Omega^2 a)_{ik} = \omega_{kl}^2 a_{il}. \quad (12)$$

(Über doppelte Indices ist zu summieren.)

Aus der Relation (10) sieht man nun, dass wir die Phase und Intensität der Welle  $A$  der ersten Antenne nicht gleichzeitig scharf angeben können. Unser Ausgangspunkt ist aber, dass wir nur den Phasenunterschied der Wellen  $A^1$  und  $A^2$  der zwei Antennen fixieren wollen. Wir verlangen, dass die zwei Wellen streng »in der Phase« schwingen. Klassisch ist dann  $e^{i\phi} = e^{i\phi^2}$ . In der





längs der Geraden  $i + k = \text{const.}$  durchlaufen. Dann sind innerhalb einer Stufe die Faktoren  $a_{ik}^* a_{i+1,k}$  bzw.  $a_{ik}^* a_{i,k+1}$  in den betreffenden Gliedern alle gleich, ebenso sind die Summen  $\sum_i q_{i,i+1}$  bzw.  $\sum_i q_{k,k+1}$  gleich. Man bekommt endlich

$$-c \bar{E} = G (\overset{1}{A} + \overset{2}{A}) e^{-i\omega t} + G^* (\overset{1}{A}^* + \overset{2}{A}^*) e^{i\omega t}.$$

Die Konstante  $G$  ergibt sich bei der Summation und ist im allgemeinen auf Grund der Gleichung  $(\overset{1}{\varphi} - \overset{2}{\varphi}) a = 0$  von Null verschieden.  $\overset{1}{A}$  und  $\overset{2}{A}$  sind natürlich Funktionen des Ortes und so enthält der obige Ausdruck das klassische Interferenzbild.

Auf Einzelheiten wollen wir nicht eingehen, auch nicht auf die magnetische Feldstärke oder die Grösse  $E^2$ . Wir bemerken aber kurz folgendes. Sind die beiden Antennen, also auch die aus ihnen herausströmenden Photonen, tatsächlich unabhängig, so muss man die Amplitude  $a_{ik}$  in der Form  $a_{ik} = a_i^1 \cdot a_k^2$  darzustellen vermögen, wo  $a_i^1$  bzw.  $a_i^2$  Wahrscheinlichkeitsamplituden der einzelnen Antennen (bzw. der betreffenden Photonen) sind. Die Unabhängigkeit samt der Forderung des scharfen Phasenunterschiedes führt auf die Gleichung

$$a_i^1 a_k^2 = a_{i-1}^1 a_{k+1}^2, \quad \text{d. h. } \frac{a_k^i}{a_{k+1}^i} = \text{const.},$$

die recht gut erfüllt werden kann.

Der Gedankengang ist leicht auf den Fall von mehr als zwei Partialwellen auszudehnen. Wenn der Zustandsvektor  $a$  für jedes Paar der Phasenfaktoren der Gleichung  $(\overset{i}{\varphi} - \overset{k}{\varphi}) a = 0$  genügt, so kann nur die Gesamtzahl  $N = \sum_i N_i$  der Photonen einen scharfen Wert haben. In Wirklichkeit sind die Verhältnisse bei nicht atomaren elektromagnetischen Wellen verwickelter.

Wir betonen nochmals; es ist möglich, so vorzugehen, dass das Interferenzbild zu einzelnen Partialwellen gehört, die entsprechenden »Photonen« werden dann von unabhängigen Quellen »gemeinsam« emittiert. Immerhin sieht man, dass die Photonen über eine noch schwächere Individualität verfügen, als ihnen im allgemeinen zugeschrieben wird.

### III

Endlich fügen wir dem folgenden Problem noch eine Bemerkung ähnlicher Art hinzu. Eine einfallende Lichtwelle wird an zwei Atomen gestreut. Bei der Berechnung der gestreuten Intensität entwickelt man das Feld gewöhn-



lich nach ebenen Wellen. (Nach Photonen mit gegebenem Impulse.) Die Intensitätsverteilung sieht so aus, als ob die durch die einzelnen Atome gestreuten Wellen interferieren. Benutzt man für die gestreuten Wellen die Partialwellen  $A_1$  und  $A_2$ , die in sich je ein einfaches, von dem Ortspunkte  $r_1$  bzw.  $r_2$  der beiden Atome ausgehendes Lichtbündel darstellen, so bekommt man für die Erregungsamplitude derselben die Werte  $e^{ik_0 r_1} \cdot K$  bzw.  $e^{ik_0 r_2} \cdot K$ , wo  $K$  eine Konstante und  $k_0$  der Wellenzahlvektor des einfallenden Lichtes ist.

Wir können den Zustandsvektor  $a_{ik}$  wie im Abschnitt II einführen und schreiben:

$$a_{10} = e^{ik_0 r_1} K, \quad a_{01} = e^{ik_0 r_2} K.$$

Es ist  $a_{10} = e^{i\Delta} a_{01}$ , wo  $\Delta = k_0(r_1 - r_2)$ . Dieser Vektor gehört zum Eigenwert 0 des Operators  $\varphi - e^{i\Delta} \varphi$ , also zum Wert  $\Delta$  des Phasenunterschiedes, die klassische Interferenz kann man also auch unmittelbar bekommen.

#### LITERATUR

1. W. HEITLER, Quantum Theory of Radiation, III. Ed., Oxford, Clarendon Press, 1954.

#### О ФАЗОВЫХ ОПЕРАТОРАХ В ТЕОРИИ ИЗЛУЧЕНИЯ

Ф. КАРОЛЬГАЗИ

Резюме

В работе с помощью фазовых операторов на простом примере показывается интерференция квантов света, принадлежащих к различным частным волнам.

# ZUR BERECHNUNG DER BILDUNG VON ELEKTRONENGRUPPEN IM PERIODISCHEN SYSTEM DER ELEMENTE

Von

P. GOMBÁS

PHYSIKALISCHES INSTITUT DER UNIVERSITÄT FÜR TECHNISCHE WISSENSCHAFTEN, BUDAPEST

(Eingegangen: 20. X. 1960)

Es wird die von FERMI gegebene Herleitung der Anzahl  $N_l$  der Elektronen mit vorgegebener Nebenquantenzahl  $l$  in einem Atom, die auf einer Aufteilung des Impulsraumes beruht, auf eine von der FERMI'schen verschiedene Weise begründet und zwar wird gezeigt, dass sich der von FERMI für  $N_l$  hergeleitete Ausdruck auf die BOHR-SOMMERFELDSche Quantenbedingung zurückführen lässt.

Eine der schönsten Anwendungen der statistischen Theorie des Atoms ist die von FERMI [1] gegebene Erklärung der Anomalien in der Bildung der Elektronengruppen im periodischen System der Elemente. Hierzu berechnet FERMI die Anzahl der  $s$ -,  $p$ -,  $d$ -, ... Elektronen in einem statistischen Atom. Die Grundlage der Berechnungen bildet eine Einteilung des Impulsraumes, wonach sich die Bildpunkte der Elektronen mit der Nebenquantenzahl  $l$  am Ort  $r$  im Impulsraum in einer mit  $r$  koaxialen Zylinderschale befinden, deren innerer Radius  $lh/(2\pi r)$  und deren äusserer Radius  $(l+1)h/(2\pi r)$  beträgt, wo  $h$  die Planksche Konstante und  $r = |r|$  die Entfernung vom Kern bezeichnet. Von JENSEN und LUTTINGER [2] wurden später die von FERMI auf Grund dieser Impulsraumeinteilung erzielten Resultate unter Zweifel gestellt und zwar mit der Begründung, dass in Anbetracht der kontinuierlichen Drehimpulsverteilung im statistischen Atom die Berechnung der Besetzungszahlen der  $s$ -,  $p$ -,  $d$ -, ... Zustände nur mit einer gewissen Willkür geschehen kann. Kurz darauf konnte THEIS [3] zeigen, dass im Gegensatz zur Auffassung von JENSEN und LUTTINGER eine willkürfreie Einteilung des Impulsraumes und somit eine willkürfreie Berechnung der Besetzungszahlen der  $s$ -,  $p$ -,  $d$ -, ... Zustände möglich ist.

In der vorliegenden Arbeit soll nun gezeigt werden, dass man die FERMI'sche Formel zur Berechnung der Besetzungszahlen auf einem Wege herleiten kann, der von dem von FERMI eingeschlagenen gänzlich verschieden und von jedwelcher Impulsraumeinteilung frei ist. Somit fallen bei dieser Herleitung auch die von JENSEN und LUTTINGER gemachten Einwände bezüglich der Impulsraumeinteilung weg. Bei dieser Herleitung geht man vom maximalen radialen Impuls  $p_{r\mu}$  der Elektronen in der Entfernung  $r$  vom Kern aus, für den man

$$p_{r\mu} = (p_\mu^2 - p_l^2)^{1/2} \quad (1)$$



erhält (man vgl. Fig. 1), wo  $p_\mu$  den maximalen Impuls in der Entfernung  $r$  vom Kern und

$$p_l = \left( l + \frac{1}{2} \right) \frac{h}{2\pi r} \quad (2)$$

den azimutalen Impuls eines Elektrons ebenfalls in der Entfernung  $r$  vom Kern mit der Nebenquantenzahl  $l$  bezeichnet.

Nach der BOHR-SOMMERFELDSchen Quantenbedingung ist

$$2 \int_{r_1}^{r_2} p_{r\mu} dr = 2 \int_{r_1}^{r_2} (p_\mu^2 - p_l^2)^{1/2} dr = \left( n_{r\mu} + \frac{1}{2} \right) h, \quad (3)$$

wo  $n_{r\mu}$  die maximale radiale Quantenzahl der Elektronen des Atoms mit der Nebenquantenzahl  $l$  bedeutet und  $r_1$  und  $r_2$  die beiden positiven Wurzeln des

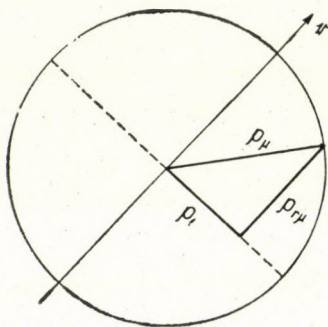


Fig. 1

Integranden in (3) bezeichnen; die Integration ist auf alle positive  $r$ -Werte zu erstrecken, für die der unter der Wurzel im Integrand stehende Ausdruck positiv ist.

Wenn man den Ausdruck (3) mit dem Gewicht  $2(2l + 1)$  eines Zustandes mit vorgegebener radialer Quantenzahl  $n_{r\mu}$  multipliziert und mit der Planckschen Konstante  $h$  dividiert, so erhält man

$$N_l = 2(2l + 1) \frac{2}{h} \int_{r_1}^{r_2} (p_\mu^2 - p_l^2)^{1/2} dr = 2(2l + 1) \left( n_{r\mu} + \frac{1}{2} \right). \quad (4)$$

Der Ausdruck mit dem Integral ist gerade der von FERMI hergeleitete, der nach Fermi mit der Anzahl der Elektronen eines Atoms mit der Nebenquantenzahl  $l$  identisch sein soll. In unserem Falle ergibt sich für diesen Ausdruck nach (4)  $2(2l + 1) (n_{r\mu} + 1/2)$ , das also in einem Atom mit der Anzahl der Elektronen mit der Nebenquantenzahl  $l$  gleich sein soll.

Wir wollen nun das Resultat (4) mit dem entsprechenden wellenmechanischen vergleichen. Nach der Wellenmechanik ist in einem Atom für eine vorgegebene radiale Quantenzahl  $n_{r\mu}$  die Anzahl der Elektronenzustände mit der Nebenquantenzahl  $l$  gleich  $2(2l + 1)$ . Bis zur maximalen radialen Quantenzahl  $n_{r\mu}$  (inclusive) stehen also  $2(2l + 1)(n_{r\mu} + 1)$  Quantenzustände mit der Nebenquantenzahl  $l$  zur Verfügung. Dies bedeutet jedoch natürlich nicht, dass diese beim in-Erscheinungtreten der zu einem vorgegebenem  $l$  gehörenden radialen Quantenzahl  $n_{r\mu}$  im Atom auch alle vollbesetzt sind. Die zur radialen Quantenzahl  $n_{r\mu}$  gehörenden  $2(2l + 1)$  Elektronenzustände werden vielmehr im allgemeinen jeweils in einer Gruppe nacheinander folgender Atome im periodischen System sukzessive besetzt, bis die volle Besetzung dieser Zustände zustande kommt. So werden z. B. die zu  $n_{r\mu} = 3$  gehörenden  $5p$ -Zustände in den im periodischem System nacheinander stehenden Atomen von In ( $Z=49$ ) bis X ( $Z=54$ ) sukzessive besetzt. Die Anzahl der zur Nebenquantenzahl  $l$  gehörenden Elektronen beträgt also für ein Atom, das am Anfang der Gruppe steht  $2(2l + 1)n_{r\mu} + 1$  und bei voller Besetzung der Zustände  $2(2l + 1)(n_{r\mu} + 1)$ . Hiernach ist es verständlich, wenn wir in der statistischen Betrachtungsweise — da diese immer nur einen Mittelwert geben kann, also dem stufenweisen Anstieg der Elektronenzahl mit wachsender Ordnungszahl nicht folgen kann — für die Anzahl der Elektronen mit der Nebenquantenzahl  $l$  den Mittelwert  $2(2l + 1)(n_{r\mu} + \frac{1}{2})$  setzen. Man kann also den durch (4) gegebenen Ausdruck für  $N_l$  auch auf Grund der hier entwickelten Betrachtungsweise als die Anzahl — genauer als den Mittelwert der Anzahl — der Elektronen mit der Nebenquantenzahl  $l$  betrachten, wodurch die FERMISCHE Behandlungsweise dieses Problems auch von einer anderen Seite eine Unterstützung erfährt.

## LITERATURVERZEICHNIS

1. E. FERMI, Nature (London) **121**, 502, 1928; Rend. Lincei (6) **7**, 342, 1928; ZS. f. Phys. **48**, 73, 1928.
2. J. H. D. JENSEN u. J. M. LUTTINGER, Phys. Rev. **86**, 907, 1952.
3. W. R. THEIS, ZS. f. Phys. **140**, 1, 1955.

ОБ ОПРЕДЕЛЕНИИ ОБРАЗОВАНИЯ ЭЛЕКТРОННЫХ ГРУПП  
В ПЕРИОДИЧЕСКОЙ СИСТЕМЕ ЭЛЕМЕНТОВ

П. ГОМБАШ

Резюме

В работе показывается, что отличным от Ферми способом можно обосновывать данный им вывод по отношению определения числа электронов  $N_l$  в атоме с заранее заданным вспомогательным квантовым числом  $l$ , который основывается на разделении пространства импульсов, а именно, показывается, что полученное Ферми выражение для  $N_l$  переходит в квантовое условие Бора-Зоммерфельда.





КРАТКИЕ СООБЩЕНИЯ —  
BRIEF REPORTS — KURZE MITTEILUNGEN

ON THE "RADIUS EFFECT"  
IN LARGE  $\text{BF}_3$  COUNTER TUBES

By

J. GORDON and P. SZABÓ

CENTRAL RESEARCH INSTITUTE FOR PHYSICS, SOLID STATE PHYSICS LABORATORY, BUDAPEST

(Received 12. IX. 1960)

High efficiency  $\text{BF}_3$ -filled proportional counters have been built in our Laboratory for neutron diffraction experiments [1]. An essential feature of these tubes is the large (5—6 cm) diameter required for measuring the intensity of neutron beams having large cross sections.

At the 1958 Geneva Conference some measurements were reported [2] which had been performed on this type of counter. By these measurements the counter efficiency was shown to be strongly dependent on the distance of the neutron beam to be detected from the anode wire and to decrease quite appreciably with this distance, so that at distances of 4—5 mm from the anode wire the sensitivity became virtually zero.

The occurrence of this so-called "radius effect" would strongly diminish the usefulness of our counters for neutron diffraction measurements. Namely in such experiments reasonable counting rates can be obtained only in case the cross section of the neutron beam to be detected is sufficiently large. Thus it became necessary to investigate the existence of this effect in our tubes. From previous measurements of the characteristics of our tubes, reported in [1], it could be inferred that this effect could not be appreciable, if it occurred at all. Nevertheless, only direct measurements can be regarded as decisive in this respect.

Such a direct measurement was performed with the use of our neutron diffractometer. A well collimated neutron beam was obtained on the neutron diffractometer by means of Soller collimators. The horizontal angular divergence of the beam was determined by the collimator to be  $20^\circ$ . The vertical divergence as determined by the height of the monochromator crystal and its distance from the counter was about  $55^\circ$ .

The counters under consideration were set parallel to the neutron beam and Cd plates were placed before the end windows of the counters each of them having a 2 mm diameter hole at various given distances from the anode wire of the counter. Under the action of the monochromator placed on the diffractometer only slow neutrons were passed onto the counter tubes, so that



the Cd plates could be considered as perfect absorbers. Consequently, virtually only the radiation passing through the holes of the Cd plates could reach the counter.

In the Figure the number of counts per minute is shown as a function of the distance  $x$  from the center of the hole to the anode wire. From the curve it is apparent that up to a distance of 20 mm from the anode wire the efficiency

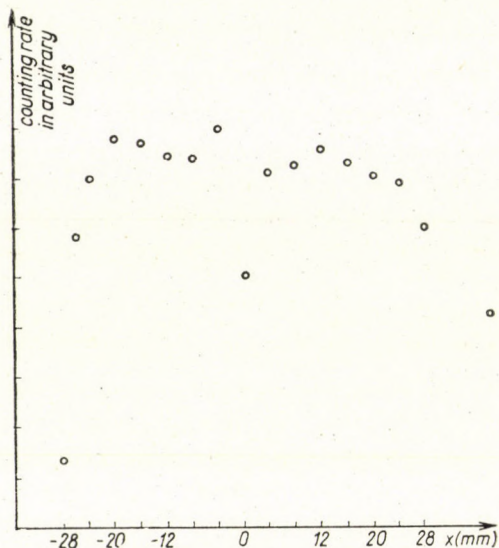


Fig.

of our counters is virtually constant, apart from the immediate surroundings of the anode wire. Here the counting efficiency is smaller because, according to the design of the counters [1], there is some scattering and absorbing material at the end-window side termination of the anode wire.

Thus the "radius effect" virtually does not occur in our counters, so that they are particularly suitable even from this point of view for the use in neutron diffractometers. The discrepancy between the results of our measurements and those published in [2] is possibly due to the insufficient purity of the counters used in the latter work.

#### REFERENCES

1. J. GORDON and P. SZABÓ, Magyar Fizikai Folyóirat (Hung. Journal of Physics) **8**, 211, 1960 (in Hungarian).
2. A. MILOJEVIC, M. KUREPA and S. RIBNIKAR, Proc. Second Geneva Conference, **14**, 325, 1958.

# ZUR THEORIE DER ELEKTRONENSTRUKTUR DES Au-ATOMS

Von

R. GÁSPÁR

FORSCHUNGSGRUPPE FÜR THEORETISCHE PHYSIK DER UNGARISCHEN AKADEMIE  
DER WISSENSCHAFTEN, BUDAPEST

(Eingegangen: 5. X. 1960)

In früheren Arbeiten [1] haben wir die Einelektronenergien und die radialen Eigenfunktionen der Cu und Ag Atome mit Hilfe eines universellen Potentials bestimmt. Die vorliegende Arbeit ist ähnlichen Berechnungen für den Fall des Au-Atoms gewidmet. Dabei hielten wir den Umstand vor Augen, dass es bei der Untersuchung von Legierungen, von Metallen und überhaupt von strukturunabhängigen Eigenschaften sehr wichtig ist, die Untersuchungen auf Grund von Atomstrukturen durchzuführen, die mit ein und derselben Methode bestimmt wurden. Die Erfüllung dieser Forderung kann am besten auf Grund von Untersuchungen mit Hilfe des universellen Potentials gewährleistet werden. Dieses Potential ist nämlich auch theoretisch wohlbegründet, und die Berechnungen für mehrere Atome zeigen [2], dass dabei die Struktur der Atome der verschiedensten Ordnungszahlen auf sehr befriedigende Weise beschrieben wird.

Die Konfiguration der Elektronen des Au-Atoms ist

$$(1s)^2 (2s)^2 (2p)^6 (3s)^2 (3p)^6 (3d)^{10} (4s)^2 (4p)^6 (4d)^{10} (4f)^{14} (5s)^2 (5p)^6 (5d)^{10} (6s).$$

Die Elektronenstruktur unterscheidet sich von derjenigen der früher behandelten Edelmetallatome hauptsächlich dadurch, dass unter den inneren Schalen hier zuerst die abgeschlossene  $(4f)^{14}$  Schale auftritt.

Die radiale Schrödingersche Gleichung, welche die radialen Eigenfunktionen der einzelnen Zustände bestimmt, ist

$$\frac{d^2 f}{dx^2} + \left[ \varepsilon + \frac{\gamma}{x} \frac{e^{-\lambda_0 x}}{1 + A_0 x} + \xi \frac{e^{-ax}}{1 + Ax} - \frac{l(l+1)}{x^2} \right] f = 0. \quad (1)$$

Hier ist

$$\varepsilon = 2 E_\mu^2 e^{-2} a_0^{-1}; \quad \gamma = 2Z\mu a_0^{-1}; \quad \xi = \frac{8}{3} \kappa_a C 0,8853^2 e^{-2} \quad (2a)$$

und

$$x = \frac{r}{\mu}; \quad \mu = \frac{0,8853 a_0}{Z^{1/3}}; \quad \kappa_a = 0,7386 e^2. \quad (2b)$$



Tabelle I

Die radialen Eigenfunktionen  $f$  der  $s$ -Elektronen des Au-Atoms.  
 $f$  in atomaren Einheiten von  $1/a_0^{1/2}$ ;  $x$  in dimensionslosen Einheiten

$x$	$f$					
	1s	2s	3s	4s	5s	6s
0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
0,006	0,442	0,149	0,069	0,034	0,016	0,005
0,012	0,801	0,268	0,125	0,062	0,028	0,009
0,018	1,090	0,363	0,169	0,083	0,038	0,012
0,024	1,318	0,434	0,202	0,100	0,045	0,014
0,030	1,495	0,486	0,225	0,111	0,050	0,016
0,036	1,627	0,520	0,241	0,119	0,054	0,017
0,042	1,722	0,538	0,248	0,122	0,055	0,017
0,048	1,785	0,543	0,249	0,123	0,056	0,017
0,054	1,822	0,535	0,244	0,120	0,054	0,017
0,060	1,837	0,518	0,235	0,115	0,052	0,016
0,066	1,833	0,492	0,221	0,108	0,049	0,015
0,072	1,814	0,458	0,204	0,099	0,045	0,014
0,078	1,782	0,418	0,183	0,089	0,040	0,012
0,084	1,742	0,373	0,160	0,077	0,035	0,011
0,090	1,693	0,323	0,135	0,065	0,029	0,009
0,108	1,517	0,158	0,053	0,024	0,011	0,003
0,126	1,322	-0,020	-0,034	-0,020	-0,009	-0,003
0,144	1,129	-0,197	-0,119	-0,062	-0,028	-0,009
0,162	0,949	-0,364	-0,197	-0,100	-0,046	-0,014
0,180	0,789	-0,516	-0,265	-0,134	-0,061	-0,019
0,198	0,649	-0,650	-0,321	-0,160	-0,073	-0,023
0,216	0,529	-0,764	-0,364	-0,180	-0,082	-0,025
0,234	0,429	-0,858	-0,394	-0,193	-0,087	-0,027
0,252	0,346	-0,932	-0,411	-0,200	-0,090	-0,028
0,270	0,277	-0,988	-0,416	-0,200	-0,090	-0,028
0,288	0,222	-1,028	-0,411	-0,194	-0,087	-0,027
0,324	0,140	-1,063	-0,370	-0,168	-0,075	-0,023
0,360	0,087	-1,053	-0,300	-0,127	-0,055	-0,017
0,396	0,053	-1,009	-0,209	-0,076	-0,032	-0,010
0,432	0,032	-0,944	-0,105	-0,019	-0,005	-0,002
0,468	0,018	-0,865	+0,005	+0,038	+0,021	+0,007
0,504	0,008	-0,781	0,114	0,094	0,046	0,015
0,540	0,001	-0,696	0,219	0,145	0,069	0,022
0,576		-0,613	0,317	0,190	0,089	0,028
0,612		-0,534	0,405	0,228	0,105	0,033
0,648		-0,462	0,482	0,257	0,117	0,036
0,684		-0,397	0,547	0,278	0,125	0,039
0,720		-0,338	0,601	0,290	0,129	0,040
0,756		-0,286	0,644	0,295	0,130	0,040
0,792		-0,241	0,676	0,292	0,126	0,039
0,828		-0,201	0,699	0,282	0,120	0,037
0,864		-0,166	0,713	0,266	0,110	0,034
0,900		-0,136	0,718	0,245	0,098	0,030
0,936		-0,110	0,717	0,219	0,084	0,025
1,008		-0,066	0,698	0,157	0,052	0,015
1,080		-0,032	0,662	0,085	0,016	0,004
1,152		-0,001	0,615	0,009	-0,021	-0,008
1,224			0,562	-0,068	-0,057	-0,019

Tabelle I

(Fortsetzung)

x	f					
	1s	2s	3s	4s	5s	6s
1,296			0,507	-0,142	-0,090	-0,029
1,368			0,451	-0,211	-0,119	-0,038
1,440			0,398	-0,273	-0,144	-0,045
1,512			0,348	-0,328	-0,163	-0,051
1,584			0,303	-0,376	-0,177	-0,055
1,656			0,261	-0,415	-0,186	-0,057
1,728			0,224	-0,446	-0,190	-0,058
1,800			0,191	-0,470	-0,189	-0,057
1,872			0,163	-0,486	-0,183	-0,054
1,944			0,138	-0,497	-0,174	-0,051
2,016			0,116	-0,502	-0,161	-0,046
2,088			0,098	-0,502	-0,145	-0,041
2,160			0,082	-0,498	-0,127	-0,034
2,304			0,057	-0,479	-0,085	-0,020
2,448			0,040	-0,451	-0,039	-0,004
2,592			0,027	-0,416	+0,010	+0,011
2,736			0,018	-0,379	0,058	0,026
2,880			0,012	-0,341	0,104	0,041
3,024			0,008	-0,303	0,147	0,053
3,168			0,005	-0,267	0,185	0,064
3,312			0,003	-0,234	0,220	0,073
3,456			0,001	-0,203	0,249	0,080
3,600				-0,176	0,274	0,085
3,744				-0,151	0,294	0,088
3,888				-0,129	0,310	0,089
4,032				-0,110	0,322	0,089
4,176				-0,094	0,330	0,087
4,320				-0,080	0,335	0,084
4,608				-0,057	0,337	0,074
4,896				-0,040	0,329	0,060
5,184				-0,028	0,315	0,044
5,472				-0,020	0,297	0,026
5,760				-0,014	0,276	0,007
6,048				-0,009	0,254	-0,012
6,336				-0,006	0,232	-0,030
6,624				-0,004	0,210	-0,048
6,912				-0,003	0,189	-0,065
7,200				-0,002	0,169	-0,081
7,488				-0,001	0,151	-0,096
7,776				-0,001	0,134	-0,109
8,064					0,118	-0,122
8,640					0,092	-0,143
9,216					0,070	-0,159
9,792					0,054	-0,171
10,368					0,041	-0,179
10,944					0,031	-0,184
11,520					0,023	-0,186
12,096					0,017	-0,186
12,672					0,013	-0,184
13,248					0,010	-0,181
13,824					0,007	-0,177
14,400					0,005	-0,172
14,976					0,004	-0,166



Tabelle I

(Fortsetzung)

$x$	$f$					
	1s	2s	3s	4s	5s	6s
16,128					0,002	-0,154
17,280					0,001	-0,140
18,432						-0,127
19,584						-0,113
20,736						-0,101
21,888						-0,090
23,040						-0,079
24,192						-0,070
25,344						-0,061
26,496						-0,053
27,648						-0,046
28,800						-0,040
29,952						-0,035
31,104						-0,030
32,256						-0,026
33,408						-0,023
34,560						-0,020
36,864						-0,015
39,168						-0,011
41,472						-0,008
43,776						-0,006
46,080						-0,004
48,384						-0,003
50,688						-0,002
52,992						-0,002
55,296						-0,001
57,600						-0,001
59,904						-0,001

In (1) und (2) bedeutet  $r$  den Kernabstand des Elektrons,  $Z$  die Ordnungszahl des Au-Atoms,  $E$  die Energie des Elektrons und  $f$  die radiale Eigenfunktion desselben. Die Konstanten haben folgende Werte:

$$\lambda_0 = 0,1837; \quad A_0 = 1,05; \quad a = 0,04; \quad A = 9; \quad C = 3,1a_0^{-1};$$

$C$  ist die Nebenquantenzahl des Elektrons. Die Differentialgleichung (1) soll unter den Randbedingungen

$$\begin{aligned} f(0) = f'(0) = \dots = f^{(l-1)}(0) &= 0, \\ f^{(l)}(0) &= \text{const.}, \\ \lim_{x \rightarrow \infty} f(x) &= 0 \end{aligned} \tag{3}$$

gelöst werden. Über diese Differentialgleichung und über die bei ihrer Lösung auftretenden Probleme gibt eine frühere Arbeit Auskunft [1].

Tabelle II

Die radialen Eigenfunktionen  $f$  der  $p$ -Elektronen des Au-Atoms und die radiale Dichte  $D$  des Au-Atoms,  $f$  in atomaren Einheiten von  $1/a_0^{3/2}$ ;  $D$  in atomaren Einheiten von  $1/a_0$ ;  $x$  in dimensionslosen Einheiten

$x$	$f$				
	$2p$	$3p$	$4p$	$5p$	$D$
0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
0,006	0,004	0,002	0,001	0,000	5,621
0,012	0,016	0,008	0,004	0,002	18,490
0,018	0,035	0,017	0,008	0,004	34,234
0,024	0,060	0,029	0,014	0,006	50,110
0,030	0,089	0,044	0,021	0,009	64,540
0,036	0,122	0,060	0,029	0,012	76,692
0,042	0,158	0,078	0,038	0,016	86,259
0,048	0,196	0,096	0,047	0,020	93,332
0,054	0,236	0,116	0,057	0,024	98,103
0,060	0,278	0,136	0,066	0,028	100,929
0,066	0,321	0,156	0,076	0,032	102,202
0,072	0,364	0,177	0,086	0,037	102,304
0,078	0,407	0,197	0,096	0,041	101,595
0,084	0,449	0,217	0,105	0,045	100,259
0,090	0,491	0,236	0,115	0,049	98,970
0,108	0,613	0,291	0,141	0,060	95,316
0,126	0,722	0,337	0,162	0,069	94,873
0,144	0,817	0,373	0,179	0,076	98,406
0,162	0,897	0,398	0,190	0,080	105,116
0,180	0,960	0,413	0,195	0,082	113,584
0,198	1,008	0,417	0,195	0,082	122,373
0,216	1,041	0,411	0,190	0,080	130,319
0,234	1,061	0,395	0,180	0,075	136,647
0,252	1,069	0,372	0,166	0,069	140,967
0,270	1,067	0,342	0,149	0,062	143,205
0,288	1,055	0,305	0,129	0,053	143,525
0,324	1,010	0,218	0,081	0,032	139,767
0,360	0,945	0,117	0,028	0,009	132,824
0,396	0,868	0,011	-0,026	-0,014	125,609
0,432	0,785	-0,095	-0,080	-0,037	120,094
0,468	0,701	-0,198	-0,129	-0,057	117,188
0,504	0,619	-0,295	-0,173	-0,076	116,923
0,540	0,542	-0,382	-0,211	-0,091	118,759
0,576	0,470	-0,460	-0,241	-0,103	121,873
0,612	0,406	-0,526	-0,263	-0,111	125,397
0,648	0,348	-0,582	-0,277	-0,116	128,566
0,684	0,297	-0,626	-0,284	-0,118	130,800
0,720	0,252	-0,661	-0,284	-0,116	131,740
0,756	0,213	-0,686	-0,278	-0,112	131,220
0,792	0,179	-0,702	-0,265	-0,105	129,262
0,828	0,150	-0,711	-0,248	-0,096	126,006
0,864	0,126	-0,712	-0,226	-0,084	121,687
0,900	0,105	-0,708	-0,200	-0,072	116,587
0,936	0,087	-0,698	-0,171	-0,058	111,003
1,008	0,059	-0,666	-0,105	-0,027	99,508
1,080	0,040	-0,623	-0,035	+0,006	88,056
1,152	0,026	-0,573	+0,038	0,038	80,998
1,224	0,015	-0,520	0,109	0,068	75,697



Tabelle II

(Fortsetzung)

x	f				
	2p	3p	4p	5p	D
1,296	0,007	-0,466	0,176	0,095	73,137
1,368		-0,414	0,238	0,119	72,906
1,440		-0,364	0,293	0,139	74,391
1,512		-0,318	0,341	0,154	76,929
1,584		-0,276	0,382	0,165	79,902
1,656		-0,239	0,416	0,172	82,795
1,728		-0,205	0,443	0,174	84,691
1,800		-0,176	0,464	0,173	86,918
1,872		-0,150	0,478	0,168	87,745
1,944		-0,127	0,487	0,160	87,655
2,016		-0,108	0,491	0,149	86,676
2,088		-0,091	0,491	0,136	84,889
2,160		-0,077	0,487	0,121	82,407
2,304		-0,054	0,470	0,085	75,902
2,448		-0,038	0,444	0,046	68,228
2,592		-0,026	0,412	0,004	60,324
2,736		-0,018	0,378	-0,038	52,797
2,880		-0,012	0,342	-0,078	46,121
3,024		-0,008	0,307	-0,116	40,471
3,168		-0,005	0,274	-0,152	35,883
3,312		-0,003	0,242	-0,184	32,286
3,456		-0,002	0,212	-0,212	29,552
3,600		-0,001	0,186	-0,237	27,530
3,744			0,162	-0,258	26,061
3,888			0,140	-0,276	25,005
4,032			0,121	-0,290	24,237
4,176			0,104	-0,301	23,655
4,320			0,089	-0,309	23,185
4,608			0,065	-0,317	22,350
4,896			0,047	-0,318	21,446
5,184			0,034	-0,311	20,370
5,472			0,024	-0,300	19,122
5,760			0,017	-0,286	17,746
6,048			0,012	-0,269	16,303
6,336			0,008	-0,251	14,850
6,624			0,005	-0,233	13,433
6,912			0,003	-0,215	12,086
7,200			0,001	-0,197	10,830
7,488				-0,180	9,676
7,776				-0,163	8,629
8,044				-0,148	7,686
8,640				-0,120	6,094
9,216				-0,097	4,843
9,792				-0,078	3,868
10,368				-0,062	3,110
10,944				-0,049	2,518
11,520				-0,039	2,055
12,086				-0,031	1,690
12,672				-0,024	1,399
13,248				-0,019	1,167
13,824				-0,015	0,978
14,400				-0,012	0,825
14,976				-0,009	0,699

Tabelle II

(Fortsetzung)

x	f				D
	2p	3p	4p	5p	
16,128				—0,006	0,508
17,280				—0,003	0,374
18,432				—0,002	0,278
19,584				—0,001	0,208
20,736				—0,001	0,156
21,888					0,117
23,040					0,088
24,192					0,066
25,344					0,050
26,496					0,037
27,648					0,028
28,800					0,021
29,952					0,016
31,104					0,012
32,256					0,009
33,408					0,007
34,560					0,005
36,864					0,003
39,168					0,001
41,472					0,001

Die radialen Eigenfunktionen des Au-Atoms teilen wir in den Tabellen I, II und III mit, welche auch die Werte der radialen Dichte und des Potentials enthalten. Die Einelektronenergien befinden sich in der Tabelle IV, in welcher als Experimentalwerte die Werte der Röntgenterme angegeben sind. Die Übereinstimmung zwischen berechneten und experimentellen Werten kann als befriedigend angesehen werden. Besonders gut ist die Übereinstimmung im Falle von nur lose gebundenen Elektronen, falls wir berücksichtigen, dass sich die Röntgentermwerte auf metallisches Gold beziehen, und somit noch durch die Austrittsarbeit  $4,76eV = \frac{e_2}{a_0}$  [5] des Goldes zu korrigieren sind. Bei dem Elektron 6s haben wir als Experimentalangabe die erste Ionisationsenergie des Au-Atoms angeführt. Für diesen Elektronenzustand und für den Zustand 5d haben wir die Rechnungen mit Hilfe zweier Potentialfelder durchgeführt. Den ersten Wert haben wir mit dem in der Gleichung (1) aufgeschriebenen Potential, und den zweiten mit einem solchen Potential bestimmt, welches im Gebiet um den Atomkern mit dem obigen übereinstimmt, an kernfernen Stellen aber in das exakte Coulombsche Potential  $e^2/r$  übergeht [3].

In der Tabelle V haben wir die radialen Wellenfunktionen der Elektronen 5d und 6s, sowie das modifizierte Potential angegeben.

Der mit Hilfe dieser Methode berechnete Wert der diamagnetischen Suszeptibilität des  $Au^+$ -Ions beträgt  $-35,200 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ Mol}^{-1}$ , und der mit



Tabelle III

Die radialen Eigenfunktionen  $f$  der  $d$ - und  $f$ -Elektronen des Au-Atoms und das Potential  $V$  des Au-Atoms.  $f$  in atomaren Einheiten von  $1/a_0^{1/2}$ ;  $V$  in atomaren Einheiten von  $1/a_0$ ;  $x$  in dimensionslosen Einheiten

$x$	$f$				$V$
	$3d$	$4d$	$5d$	$4f$	
0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	
0,006	0,000	0,000	0,000	0,000	5397,77
0,012	0,000	0,000	0,000	0,000	2681,22
0,018	0,000	0,000	0,000	0,000	1775,69
0,024	0,001	0,000	0,000	0,000	1323,02
0,030	0,001	0,001	0,000	0,000	1051,43
0,036	0,002	0,001	0,000	0,000	870,386
0,042	0,004	0,002	0,001	0,000	741,131
0,048	0,005	0,003	0,001	0,000	644,217
0,054	0,007	0,004	0,001	0,000	568,866
0,060	0,010	0,005	0,002	0,000	508,615
0,066	0,013	0,006	0,002	0,000	459,340
0,072	0,016	0,008	0,003	0,000	418,305
0,078	0,020	0,010	0,003	0,000	383,603
0,084	0,024	0,012	0,004	0,000	353,884
0,090	0,028	0,014	0,005	0,000	328,144
0,108	0,044	0,022	0,007	0,001	268,192
0,126	0,064	0,032	0,011	0,001	225,495
0,144	0,087	0,043	0,014	0,002	193,586
0,162	0,113	0,056	0,019	0,002	168,867
0,180	0,141	0,070	0,023	0,004	149,176
0,198	0,172	0,084	0,028	0,005	133,141
0,216	0,204	0,099	0,033	0,006	119,846
0,234	0,237	0,115	0,038	0,008	108,655
0,252	0,270	0,131	0,044	0,010	99,116
0,270	0,304	0,146	0,049	0,013	90,897
0,288	0,337	0,161	0,054	0,016	83,748
0,324	0,402	0,189	0,063	0,022	71,942
0,360	0,463	0,215	0,071	0,030	62,620
0,396	0,519	0,235	0,078	0,039	55,097
0,432	0,568	0,251	0,083	0,049	48,915
0,468	0,609	0,262	0,086	0,060	43,759
0,504	0,643	0,268	0,087	0,071	39,404
0,540	0,670	0,269	0,087	0,084	35,686
0,576	0,689	0,265	0,084	0,097	32,482
0,612	0,702	0,256	0,081	0,111	29,697
0,648	0,708	0,243	0,076	0,125	27,261
0,684	0,709	0,226	0,069	0,139	25,113
0,720	0,705	0,206	0,062	0,154	23,211
0,756	0,696	0,183	0,053	0,168	21,516
0,792	0,684	0,158	0,044	0,183	20,000
0,828	0,668	0,131	0,034	0,197	18,637
0,864	0,650	0,102	0,024	0,211	17,406
0,900	0,629	0,073	0,014	0,225	16,292
0,936	0,607	0,042	0,003	0,239	15,279
1,008	0,560	-0,020	-0,018	0,265	13,512
1,080	0,510	-0,081	-0,039	0,289	12,027
1,152	0,460	-0,140	-0,058	0,310	10,766
1,224	0,412	-0,195	-0,075	0,330	9,687



Tabelle III (Fortsetzung)

$x$	$f$				$V$
	3d	4d	5d	4f	
1,296	0,365	-0,245	-0,091	0,347	8,756
1,368	0,322	-0,290	-0,103	0,362	7,948
1,440	0,283	-0,330	-0,114	0,375	7,241
1,512	0,247	-0,364	-0,121	0,385	6,620
1,584	0,215	-0,393	-0,127	0,393	6,071
1,656	0,186	-0,416	-0,130	0,399	5,584
1,728	0,160	-0,434	-0,130	0,404	5,150
1,800	0,138	-0,448	-0,129	0,406	4,761
1,872	0,118	-0,457	-0,125	0,407	4,412
1,944	0,101	-0,463	-0,120	0,407	4,097
2,016	0,086	-0,465	-0,114	0,405	3,813
2,088	0,074	-0,464	-0,106	0,402	3,557
2,160	0,063	-0,460	-0,097	0,399	3,320
2,304	0,045	-0,446	-0,075	0,388	2,911
2,448	0,032	-0,425	-0,052	0,375	2,567
2,592	0,023	-0,400	-0,026	0,360	2,277
2,736	0,016	-0,372	0,000	0,343	2,029
2,880	0,011	-0,343	0,026	0,326	1,816
3,024	0,008	-0,314	0,052	0,308	1,632
3,168	0,005	-0,286	0,077	0,290	1,472
3,312	0,003	-0,258	0,100	0,272	1,332
3,456	0,002	-0,232	0,122	0,255	1,210
3,600		-0,208	0,142	0,238	1,102
3,744		-0,185	0,161	0,222	1,006
3,888		-0,165	0,177	0,207	0,921
4,032		-0,146	0,192	0,192	0,846
4,176		-0,129	0,205	0,178	0,778
4,320		-0,114	0,217	0,165	0,717
4,608		-0,088	0,235	0,141	0,613
4,896		-0,068	0,248	0,120	0,528
5,184		-0,051	0,256	0,102	0,458
5,472		-0,039	0,260	0,087	0,400
5,760		-0,029	0,261	0,074	0,351
6,048		-0,022	0,259	0,062	0,309
6,336		-0,016	0,255	0,053	0,274
6,624		-0,012	0,250	0,045	0,244
6,912		-0,008	0,243	0,038	0,218
7,200		-0,005	0,235	0,032	0,195
7,488		-0,002	0,226	0,027	0,176
7,776			0,217	0,023	0,159
8,063			0,208	0,019	0,144
8,640			0,189	0,014	0,120
9,216			0,171	0,010	0,100
9,792			0,154	0,007	0,085
10,368			0,137	0,005	0,073
10,944			0,122	0,003	0,063
11,520			0,109	0,002	0,055
12,096			0,097	0,002	0,048
12,672			0,086	0,001	0,043
13,248			0,076	0,001	0,038
13,824			0,067		0,034
14,400			0,059		0,031
14,976			0,052		0,028



Tabelle III

(Fortsetzung)

x	f				v
	3d	4d	5d	4f	
16,128			0,041		0,023
17,280			0,032		0,019
18,432			0,025		0,017
19,584			0,019		0,014
20,736			0,015		0,013
21,888			0,011		0,011
23,040			0,009		0,010
24,192			0,007		0,009
25,344			0,005		0,008
26,496			0,003		0,007
27,648			0,002		0,007
28,800			0,001		0,006
29,952					0,005
31,104					0,005
32,256					0,005
33,408					0,004
34,560					0,004
36,864					0,003
39,168					0,003
41,472					0,002
43,776					0,002
46,080					0,002
48,384					0,002
50,688					0,001
52,992					0,001
55,296					0,001
57,600					0,001
59,904					0,001
62,208					0,001
64,512					0,001

dem modifizierten Potential berechnete  $-35,498 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ Mol}^{-1}$  was mit dem experimentellen  $> -40, \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ Mol}^{-1}$  Wert gut übereinstimmt [4]. Der Beitrag der einzelnen Elektronenschalen wird in der Tabelle VI gezeigt. Auch die geringe Abweichung zwischen den zwei berechneten Werten der diamagnetischen Suszeptibilität scheint darauf hinzuweisen, dass die obenerwähnte Modifikation nicht einmal die Wellenfunktionen der äusseren Elektronen allzu sehr beeinflusst.

In Abb. 1 zeigen wir die mit dem modifizierten Potential berechnete radiale Dichte des Au-Atoms. In derselben Abbildung zeigt die gestrichelte Linie die radiale Dichte des Au-Atoms, wie dieselbe durch HENRY, ohne Berücksichtigung der Austauschenergie, auf Grund der »self-consistent field«-Methode berechnet worden ist [5]. Ein Vergleich der beiden Kurven zeigt, dass die unter Berücksichtigung der Austauschenergie berechnete Kurve — sich vom Atomkern entfernend — schneller gegen Null strebt als die ohne Berücksichtigung derselben berechnete Kurve.

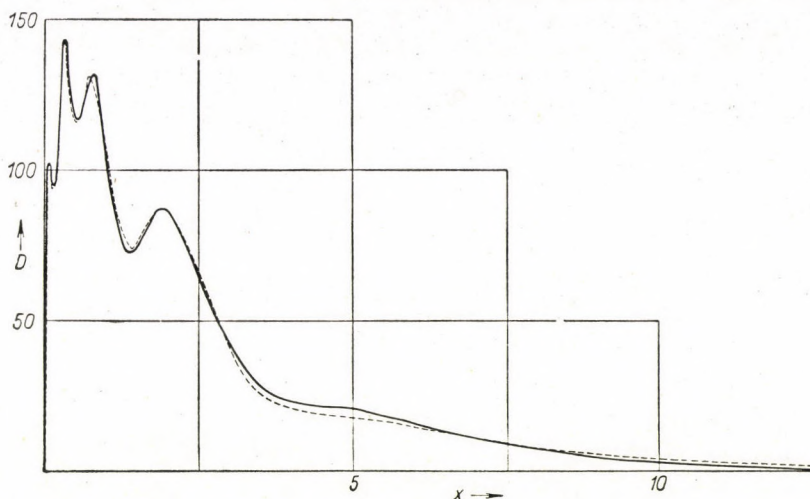


Abb. 1. Die radiale Dichte  $D = 4 \pi r^2 \rho$  des Au-Atoms.

- bestimmt mit Hilfe des modifizierten universellen Potentials
- - - - - bestimmt ohne Berücksichtigung des Austausches, mit Hilfe der »self-consistent field«-Methode

Tabelle IV

Die mit dem universellen Potential bestimmten Energierterme der Elektronen des Au-Atoms und die Röntgentermwerte nach LANDOLT und BÖRNSTEIN. (Es werden die arithmetischen Mittelwerte der Röntgendublette angegeben. Als Wert des 6s-Terms steht die erste Ionisationsenergie.) Die Energiwerte in atomaren Einheiten von  $e^2/a_0$

	1s	2s	3s	4s	5s	6s
Universelles Potential	2720,84	452,25	104,16	22,61	3,469	0,227 0,255
Nach LANDOLT—BÖRNSTEIN	2972,88	528,65	126,24	28,10	4,070	0,514
	2p	3p	4p	5p		
Universelles Potential	438,51	96,34	19,17	2,345		
Nach LANDOLT—BÖRNSTEIN	472,44	108,57	21,99	2,40		
	3d	4d	5d	4f		
Universelles Potential	80,28	12,54	0,541 0,542	3,609		
Nach LANDOLT—BÖRNSTEIN	82,88	12,76	0,21	3,18		



Tabelle V

Die radialen Eigenfunktionen  $f$  der 6s- und 5d-Elektronen des Au-Atoms und die radiale Dichte  $D$  des Au-Atoms mit dem modifizierten Potential bestimmt. Das modifizierte Potential  $V$  des Au-Atoms.  $f$  in atomaren Einheiten von  $1/a_0^{3/2}$ ;  $D$  in atomaren Einheiten von  $1/a_0$ ;  $V$  in atomaren Einheiten von  $1/a_0$ ;  $x$  in dimensionslosen Einheiten

$x$	$f$		$D$	$V$
	6s	5d		
0,000	0,000	0,000	0,000	
0,006	0,004	0,000	5,621	5397,77
0,012	0,008	0,000	18,490	2681,22
0,018	0,011	0,000	34,234	1775,69
0,024	0,013	0,000	50,110	1323,02
0,030	0,014	0,000	64,539	1051,43
0,036	0,015	0,000	76,691	870,386
0,042	0,016	0,001	86,258	741,131
0,048	0,016	0,001	93,332	644,217
0,054	0,015	0,001	98,102	568,866
0,060	0,015	0,002	100,929	508,615
0,066	0,014	0,002	102,201	459,340
0,072	0,013	0,003	102,303	418,305
0,078	0,011	0,003	101,595	383,603
0,084	0,010	0,004	100,394	353,884
0,090	0,008	0,005	98,970	328,144
0,108	0,003	0,007	95,316	268,192
0,126	-0,003	0,011	94,873	225,495
0,144	-0,008	0,014	98,406	193,586
0,162	-0,013	0,019	105,115	168,867
0,180	-0,017	0,023	113,584	149,176
0,198	-0,021	0,028	122,371	133,141
0,216	-0,023	0,033	130,317	119,846
0,234	-0,025	0,038	136,645	108,655
0,252	-0,025	0,043	140,964	99,116
0,270	-0,025	0,049	143,202	90,897
0,288	-0,025	0,054	143,523	83,748
0,324	-0,021	0,063	139,764	71,942
0,360	-0,015	0,071	132,821	62,620
0,396	-0,009	0,077	125,606	55,097
0,432	-0,001	0,082	120,091	48,915
0,468	+0,006	0,085	117,184	43,759
0,504	0,013	0,087	116,919	39,404
0,540	0,020	0,086	118,754	35,686
0,576	0,025	0,084	121,868	32,482
0,612	0,030	0,081	125,392	29,697
0,648	0,033	0,075	128,561	27,261
0,684	0,035	0,069	130,795	25,113
0,720	0,036	0,062	131,735	23,211
0,756	0,036	0,053	131,215	21,516
0,792	0,035	0,044	129,258	20,000
0,828	0,033	0,034	126,002	18,637
0,864	0,031	0,024	121,685	17,406
0,900	0,027	0,014	116,584	16,292
0,936	0,023	0,003	111,002	15,279



Tabelle V

(Fortsetzung)

$x$	$f$		$D$	$V$
	$6s$	$5d$		
1,008	0,014	-0,018	99,508	13,512
1,080	0,003	-0,039	89,102	12,027
1,152	-0,007	-0,058	80,996	10,766
1,224	-0,017	-0,075	75,693	9,687
1,296	-0,026	-0,090	73,131	8,756
1,368	-0,035	-0,103	72,897	7,948
1,440	-0,041	-0,113	74,380	7,241
1,512	-0,046	-0,121	76,916	6,620
1,584	-0,050	-0,126	79,887	6,071
1,656	-0,052	-0,129	82,779	5,584
1,728	-0,052	-0,130	84,675	5,150
1,800	-0,052	-0,129	86,903	4,761
1,872	-0,049	-0,125	87,731	4,412
1,944	-0,046	-0,120	87,642	4,097
2,016	-0,042	-0,113	86,665	3,813
2,088	-0,037	-0,105	84,880	3,557
2,160	-0,031	-0,096	82,399	3,320
2,304	-0,018	-0,075	75,898	2,911
2,448	-0,004	-0,051	68,226	2,567
2,592	+0,010	-0,026	60,324	2,277
2,736	0,024	+0,000	52,795	2,029
2,880	0,037	0,026	46,117	1,816
3,024	0,048	0,052	40,454	1,632
3,168	0,058	0,077	35,871	1,472
3,312	0,066	0,100	32,269	1,332
3,456	0,073	0,122	29,531	1,210
3,600	0,077	0,142	27,503	1,102
3,744	0,080	0,160	26,031	1,006
3,888	0,081	0,177	24,971	0,921
4,032	0,081	0,192	24,201	0,846
4,176	0,079	0,205	23,617	0,773
4,320	0,076	0,216	23,146	0,717
4,608	0,067	0,235	22,310	0,613
4,896	0,055	0,248	21,407	0,528
5,184	0,040	0,256	20,334	0,458
5,472	0,024	0,260	19,087	0,400
5,760	0,007	0,261	17,713	0,351
6,048	-0,010	0,259	16,271	0,309
6,336	-0,027	0,255	14,818	0,274
6,624	-0,043	0,249	13,400	0,244
6,912	-0,059	0,242	12,051	0,218
7,200	-0,073	0,234	10,792	0,195
7,488	-0,087	0,226	9,635	0,176
7,776	-0,099	0,217	8,584	0,159
8,064	-0,110	0,208	7,639	0,144
8,640	-0,130	0,189	6,040	0,120
9,216	-0,145	0,171	4,784	0,100
9,792	-0,156	0,154	3,807	0,085
10,368	-0,164	0,137	3,048	0,073
10,944	-0,169	0,123	2,454	0,063
11,520	-0,172	0,109	1,999	0,055
12,096	-0,173	0,097	1,639	0,048
12,672	-0,172	0,086	1,355	0,043



Tabelle V

(Fortsetzung)

$x$	$f$		$D$	$V$
	$6s$	$5d$		
13,248	-0,171	0,076	1,130	0,038
13,824	-0,168	0,068	0,950	0,034
14,400	-0,165	0,060	0,806	0,031
14,976	-0,161	0,053	0,689	0,028
16,128	-0,152	0,042	0,517	0,026
17,280	-0,143	0,033	0,397	0,024
18,432	-0,133	0,026	0,311	0,022
19,584	-0,123	0,021	0,246	0,021
20,736	-0,113	0,017	0,196	0,020
21,888	-0,104	0,013	0,157	0,019
23,040	-0,094	0,011	0,126	0,018
24,192	-0,086	0,008	0,101	0,017
25,344	-0,078	0,007	0,081	0,016
26,496	-0,070	0,005	0,065	0,016
27,648	-0,063	0,004	0,052	0,015
28,800	-0,056	0,003	0,041	0,014
29,952	-0,050	0,003	0,033	0,014
31,104	-0,045	0,002	0,026	0,013
32,256	-0,040	0,002	0,020	0,013
33,408	-0,036	0,001	0,016	0,012
34,560	-0,032	0,001	0,013	0,012
36,864	-0,025	0,001	0,008	0,011
39,168	-0,019		0,005	0,011
41,472	-0,015		0,003	0,010
43,776	-0,011		0,002	0,009
46,080	-0,009		0,001	0,009
48,384	-0,007		0,001	0,009
50,688	-0,005		0,0003	0,008
52,992	-0,004		0,0002	0,008
55,296	-0,003		0,0001	0,007
57,600	-0,002		0,0001	0,007
59,904	-0,002			0,007
62,208	-0,001			0,007
64,512	-0,001			0,006
66,816	-0,001			0,006
69,120				

Tabelle VI

Der Beitrag der Elektronengruppen des Au<sup>+</sup>-Ions zur diamagnetischen Suszeptibilität des Au<sup>+</sup>-Ions. Die Werte sind in Einheiten von 10<sup>-6</sup> cm<sup>3</sup> Mol<sup>-1</sup> angegeben

	$\chi$		$\chi$		$\chi$	
(1s) <sup>2</sup>	0,001					
(2s) <sup>2</sup>	0,012	(2p) <sup>6</sup>	0,026			
(3s) <sup>2</sup>	0,075	(3p) <sup>6</sup>	0,204	(3d) <sup>10</sup>	0,265	
(4s) <sup>2</sup>	0,362	(4p) <sup>6</sup>	1,110	(4d) <sup>10</sup>	1,970	(4f) <sup>14</sup> 3,408
(5s) <sup>2</sup>	1,825	(5p) <sup>6</sup>	6,441	(5d) <sup>10</sup>	19,501 19,799	
s-Elektronen	2,275	p-Elektronen	7,781	d-Elektronen	21,736	f-Elektronen 3,408

Für die Durchführung der mit dieser Arbeit zusammenhängenden Berechnungen bin ich meinen Mitarbeitern Fräulein JUDIT MÁGORI und Frau I. KOCSIS zu Dank verpflichtet.

## LITERATUR

1. R. GÁSPÁR, Acta Phys. Hung., **3**, 263, 1954; R. GÁSPÁR und K. MOLNÁR, Acta Phys. Hung. **7**, 455, 1957.
2. Für Literaturangaben s. etwa R. GÁSPÁR und É. SZABÓ, Acta Phys. Hung., **10**, 157, 1959.
3. R. GÁSPÁR und K. MOLNÁR, loc. cit.
4. LANDOLT—BÖRNSTEIN, Zahlenwerte und Funktionen, Bd. I. Teil 1. Atome und Ionen., Springer Verlag, Berlin, 1950, S. 397.
5. R. SUHRMANN, Zs. Elektrochem., **35**, 681, 1929.





# CONFIGURATION INTERACTION FOR WAVE FUNCTIONS BUILT UP FROM ORTHOGONAL TWO-ELECTRON ORBITALS

By

E. KAPUY

RESEARCH GROUP FOR THEORETICAL PHYSICS, HUNGARIAN ACADEMY OF SCIENCES, BUDAPEST

(Received 5. X. 1960)

As has been shown in a previous paper [1] the orthogonal two-electron orbitals can be derived from coupled nonlinear integro-differential equations, which resemble the Hartree-Fock equations.

If the system contains  $2N$  electrons its wave function satisfying the Pauli principle is of the form

$$\Psi = \frac{2^{\frac{N}{2}}}{\sqrt{(2N)!}} \sum_P (-1)^p P \psi_1(1|2) \psi_2(3|4) \dots \psi_N(2N-1|2N), \quad (1)$$

when the two-electron orbitals are antisymmetrical:

$$\psi_I(1|2) = -\psi_I(2|1),$$

(the arguments include in addition to the three space coordinates the spin coordinate) normalized:

$$\int \psi_I^*(1|2) \psi_I(1|2) d\tau_1 d\tau_2 = 1, \quad (I = 1, 2, \dots, N), \quad (2)$$

and orthogonal in the strong sense:

$$\int \psi_I^*(1|2) \psi_J(1|3) d\tau_1 = 0, \quad \text{if } I \neq J, \quad (I, J = 1, 2, \dots, N). \quad (3)$$

(In (1)  $P$  means the permutations exchanging the electrons between the two-electron orbitals.  $p$  is the parity of the above permutations).

Varying the two-electron orbitals  $\psi_I$  in the energy expression [2, 3, 4]:

$$E = H(0) + \sum_I \int \psi_I^*(1|2) \left[ H(1) + H(2) + \frac{1}{r_{12}} \right] \psi_I(1|2) d\tau_1 d\tau_2 + \quad (4)$$

$$+ 2 \sum_I \sum_{J \neq I} \int \frac{d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 d\tau_4}{r_{13}} [1 - P_{13}] \psi_J^*(3'|4) \psi_J(3|4) \psi_I^*(1'|2) \psi_I(1|2),$$



and taking the auxiliary conditions (2) in the usual way into account, further applying instead of (3) the constraints:

$$\int \psi_I^*(1|2) \psi_J^*(3|4) \psi_I(3|2) \psi_J(1|4) d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 d\tau_4 = D_{IJ} \ll 1, \quad (5)$$

$$I \neq J, \quad (I, J = 1, 2, \dots, N),$$

and assuming that the values of the integrals  $D_{IJ}$  can be taken as so small that the strong constraints (3) are "almost" satisfied (if the values  $D_{IJ}$  were exactly zero the variational problem in the above form would probably have no solution at all) we obtain for the  $\psi_I$ 's the following system of equations:

$$\left\{ H(1) + H(2) + \frac{1}{r_{12}} + 2 \sum_{J \neq I} \int d\tau_3 d\tau_4 \left[ \frac{1 - P_{13}}{r_{13}} + \frac{1 - P_{23}}{r_{23}} \right] \psi_J^*(3'|4) \psi_J(3|4) \right\} \psi_I(1|2) = \quad (6)$$

$$= \left\{ E^I + \sum_{J \neq I} E^{IJ} \int d\tau_3 d\tau_4 [P_{13} + P_{23}] \psi_J^*(3'|4) \psi_J(3|4) \right\} \psi_I(1|2),$$

$$(I = 1, 2, 3, \dots, N).$$

(Similar equations are obtained for the complex conjugate  $\psi_I^*$ 's.)

If the system of equations (6) is correct, even if  $D_{IJ} \rightarrow 0$  and can be exactly solved, the antisymmetrical solutions of these equations  $\psi_{10}, \psi_{20}, \dots, \psi_{N0}$  satisfying the auxiliary conditions (2) and (5), which correspond to the lowest  $E^{10}, E^{20}, \dots, E^{N0}$  values, give the approximate wave function for the ground state. To solve the equations (6) exactly is as yet a hopeless task. Instead, it is practicable to determine the  $\psi_I$ 's directly, with the aid of a variational procedure. We take such antisymmetrical functions  $\tilde{\psi}_{Ii}(1|2)$  ( $I = 1, 2, 3, \dots, N; i = 0, 1, 2, \dots$ ), which contain many parameters (linear and nonlinear) and are of such a form as to satisfy the constraints (5), i. e.  $D_{IJ} \ll 1$  (and the integrals  $\int \psi_I^*(1|2) \psi_J(1|3) d\tau_1$  can be neglected) for all pairs  $IJ$  if  $I \neq J$ . Substituting the functions  $\tilde{\psi}_{I0}$  into the energy expression (4) the parameters in them are varied so that the energy is minimized and the auxiliary conditions (3) and (5) fulfilled simultaneously. In this way we obtain the energy  $E^0$  and the two-electron orbitals  $\tilde{\psi}_{I0}$  corresponding to the ground state.

Knowing the  $\tilde{\psi}_{I0}$ 's we construct the following operators

$$\tilde{H}^I = \left\{ H(1) + H(2) + \frac{1}{r_{12}} + 2 \sum_{J \neq I} \int d\tau_3 d\tau_4 \left[ \frac{1 - P_{13}}{r_{13}} + \frac{1 - P_{23}}{r_{23}} \right] \tilde{\psi}_{J0}^*(3'|4) \tilde{\psi}_{J0}(3|4) \right\}. \quad (7)$$

Now we minimize the expressions

$$\tilde{E}^I = \int \tilde{\psi}_{I1}^* \tilde{H}^I \psi_{I1} d\tau_1 d\tau_2, \quad (I = 1, 2, 3, \dots N), \quad (8)$$

varying the parameters only in the functions  $\psi_{I1}$  subject to the auxiliary conditions

$$\begin{aligned} \int \tilde{\psi}_{I1}^* \tilde{\psi}_{I1} d\tau_1 d\tau_2 &= 1, \quad (I = 1, 2, 3, \dots N), \\ \int \tilde{\psi}_{I1}^* \tilde{\psi}_{J0} d\tau_1 d\tau_2 &= 0, \quad (I = 1, 2, 3, \dots N), \\ \int \tilde{\psi}_{I1}^*(1|2) \tilde{\psi}_{J0}^*(3|4) \tilde{\psi}_{I1}(3|2) \tilde{\psi}_{J0}(1|4) d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 d\tau_4 &= D_{I1J0} \ll 1, \end{aligned}$$

for all pairs  $I1 J0$ , if  $I \neq J$ .

Then we minimize the expressions  $\tilde{E}_{I2}$  constructed of the  $\tilde{\psi}_{I2}$ 's subject to the following auxiliary conditions:

$$\begin{aligned} \int \tilde{\psi}_{I2}^* \tilde{\psi}_{I2} d\tau_1 d\tau_2 &= 1, \quad (I = 1, 2, 3, \dots N); \\ \int \tilde{\psi}_{I2}^*(1|2) \tilde{\psi}_{J0}^*(3|4) \tilde{\psi}_{I2}(3|2) \tilde{\psi}_{J0}(1|4) d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 d\tau_4 &= D_{I2J0} \ll 1, \\ &\text{for all pairs } I2 J0, \text{ if } I \neq J; \end{aligned}$$

$$\int \tilde{\psi}_{I2}^* \tilde{\psi}_{Ii} d\tau_1 d\tau_2 = 0, \quad (I = 1, 2, 3, \dots N; i = 0, 1).$$

Following the above procedure we obtain a set of functions having the properties

$$\int \tilde{\psi}_{Ii}^* \tilde{\psi}_{Ii} d\tau_1 d\tau_2 = 1, \quad (I = 1, 2, 3, \dots N; i = 0, 1, 2 \dots), \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \int \tilde{\psi}_{Ii}^*(1|2) \tilde{\psi}_{J0}(1|3) d\tau_1 &\cong 0, \\ \text{if } I \neq J (I, J = 1, 2, 3, \dots N; i = 0, 1, 2 \dots), & \quad (10) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \int \tilde{\psi}_{Ii}^* \tilde{\psi}_{Ii'} d\tau_1 d\tau_2 &= 0, \\ \text{if } i \neq i' (I = 1, 2, 3, \dots N; i, i' = 0, 1, 2, \dots). & \quad (11) \end{aligned}$$

It is, however, not true in general that

$$\int \tilde{\psi}_{Ii}^*(1|2) \tilde{\psi}_{Jj}(1|3) d\tau_1 \cong 0 \text{ if } I \neq J \text{ and both } i > 0 \text{ and } j > 0. \quad (12)$$

The properties (9), (10) are due to the following: We may assume that when  $D_{IJ} \rightarrow 0$  and  $\int \psi_i^*(1|3) \psi_j(2|3) d\tau_3 \rightarrow 0$  then  $|E^{IJ}| \rightarrow \infty$ , so that  $E^{IJ} \int \psi_i^*(1|3) \psi_j(2|3) d\tau_3 \rightarrow \mathcal{E}^{IJ}(1|2)$  for all pairs  $I, J$  if  $I \neq J$ , and the  $\mathcal{E}^{IJ}(1|2)$ 's are well-behaved functions satisfying

$$\int \psi_i^*(1|2) \mathcal{E}^{IJ}(3|2) \psi_j(1|3) d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 \begin{cases} 0 & \text{if } K \neq J, \\ \text{bounded if } & K = J. \end{cases}$$



In this case the system of equations (6) has the following form:

$$\left\{ H(1) + H(2) + \frac{1}{r_{12}} + 2 \sum_{I \neq J} \int d\tau_3 d\tau_4 \left[ \frac{1 - P_{13}}{r_{13}} + \frac{1 - P_{23}}{r_{23}} \right] \psi_J^*(3|4) \psi_J(3|4) \right\} \psi_I(1|2) = E^I \psi_I(1|2) + \sum_{J \neq I} \int d\tau_3 \{ \mathcal{E}^{IJ}(3|2) \psi_J(1|3) + \mathcal{E}^{IJ}(3|1) \psi_J(3|2) \}, \quad (I = 1, 2, 3, \dots N).$$

Keeping the  $\psi_{I2}$ 's corresponding to the ground state fixed in the bracketed expressions on the right- and left-hand side of the equations we may assume that the system of equations

$$H^I \psi_{Ii}(1|2) = E^{Ii} \psi_{Ii}(1|2) + \sum_{J \neq I} \int d\tau_3 \{ \mathcal{E}^{IiJ0}(3|2) \psi_{J0}(1|3) + \mathcal{E}^{IiJ0}(3|1) \psi_{J0}(3|2) \},$$

$$H^I = \left\{ H(1) + H(2) + \frac{1}{r_{12}} + 2 \sum_{J \neq I} \int d\tau_3 d\tau_4 \left[ \frac{1 - P_{13}}{r_{13}} + \frac{1 - P_{23}}{r_{23}} \right] \psi_{J0}^*(3|4) \psi_{J0}(3|4) \right\}, \quad (I = 1, 2, 3, \dots N; i = 0, 1, 2, \dots)$$

has besides the  $\psi_{I0}$ 's some antisymmetrical solutions  $\psi_{Ii}$  (these can be regarded as the excited states of the individual electron pairs), which satisfy the constraints (2) and (3) with the Lagrangian multipliers  $E^{Ii}$  and  $\mathcal{E}^{IiJ0}(1|2)$ . These solutions  $\psi_{Ii}$  ( $I = 1, 2, 3, \dots N; i = 0, 1, 2, \dots$ ) as a consequence of the assumption given above conform to the properties (9), (10), (11) and in addition

$$\int \psi_{Ii}^*(1|2) H^I \psi_{Ii}(1|2) d\tau_1 d\tau_2 = E^{Ii} \delta_{ii}.$$

Thus the functions  $\tilde{\psi}_{Ii}$  can be regarded as approximations to the exact solutions  $\psi_{Ii}$  of the above system of equations. The set of functions obtained by the former procedure

$$\begin{array}{cccc} \tilde{\psi}_{10}, & \tilde{\psi}_{11}, & \tilde{\psi}_{12}, & \tilde{\psi}_{13} \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ \tilde{\psi}_{I0}, & \tilde{\psi}_{I1}, \dots \tilde{\psi}_{Ii}, \dots \tilde{\psi}_{Ii'}, \dots & & \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ \tilde{\psi}_{J0}, & \tilde{\psi}_{J1}, \dots \tilde{\psi}_{Jj}, \dots \tilde{\psi}_{Jj'}, \dots & & \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ \tilde{\psi}_{N0}, & \tilde{\psi}_{N1}, & \tilde{\psi}_{N2}, & \tilde{\psi}_{N3'}, \dots \end{array} \quad (13)$$

is not a complete one, thus the exact wave function cannot be expanded in terms of it. It is reasonable, however, to assume that the functions  $\tilde{\psi}_{Ii}$  ( $i = 0, 1, 2, 3, \dots$ ) (increasing the number of variational parameters in them) form an "almost" complete set in the subspace  $I$ , i. e. any antisymmetrical two-electron function which is orthogonal in the strong sense to all the  $\psi_{J0}$ 's ( $J \neq I$ ) can be expanded in terms of the functions  $\tilde{\psi}_{Ii}$ . We may assume further that, if the system consists of loosely coupled electron pairs, its wave function can be expressed as a good approximation by the superposition of configurations constructed of the two-electron orbitals (13). We do not assume, however, in contrast to McWEENY [5, 6] that

$$\int \tilde{\psi}_{Ii}^*(1|2) \tilde{\psi}_{Ii'}(1|3) d\tau_1 = 0, \quad \text{if } i \neq i',$$

as this would mean too stringent a constraint for the excited states. Each configuration  $K$  contains one two-electron function from each of the rows of (13), i. e. it can be characterized by giving the second indices of the two-electron orbitals involved in it., e. g.  $\Psi \dots i \dots j \dots$ .

To determine the set of functions (13) is a very difficult task as yet. A simple approximate solution, as was shown in [3, 7] can be obtained in the following manner:

1. from orthonormalized spin orbitals  $v_\nu(1)$  we form  $N$  antisymmetrical two-electron functions of the form

$$\varphi_I(1|2) = \sum_{\mu_I < \nu_I} c_{\mu_I \nu_I} (v_{\mu_I}(1) v_{\nu_I}(2) - v_{\mu_I}(2) v_{\nu_I}(1)).$$

If the spin orbitals are partitioned in such a way that there is none common, the orthogonality conditions (3) are fulfilled automatically.

2. The coefficients  $c$  and the Lagrange multipliers  $E^I$  can be determined by iteration. If e. g.  $\varphi_I$  contains  $n_I$  different spin orbitals  $v_{\nu_I}$ , we obtain  $\binom{n_I}{2}$  roots  $E^{II}$  and the same number of sets  $c$ , i. e.  $\varphi_{II}$ 's.

The solutions so obtained satisfy the conditions (9), (10) and (11), and besides the conditions (12) are also fulfilled. This greatly facilitates the calculation of the matrix elements of the Hamilton operator when taking the configuration interaction into account.

Expressing the Hamilton operator in the usual manner in the form

$$H = H(0) + \sum_{\alpha=1}^{2N} H(\alpha) + \sum_{1=\alpha < \beta}^{2N} \frac{1}{r_{\alpha\beta}},$$



we introduce the following denotations:

$$H_{KL} = H_{\dots ii' \dots jj' \dots} = \int \Phi_K^* H \Phi_L d\tau = \int \Phi^*_{\dots i \dots j \dots} H \Phi_{\dots i' \dots j' \dots} d\tau, \quad (14)$$

$$h_{ii'}^I = \int \varphi_{ii'}^*(1|2) \left[ H(1) + H(2) + \frac{1}{r_{12}} \right] \varphi_{ii'}(1|2) d\tau_1 d\tau_2, \quad (15)$$

$$I_{ii'jj'}^{IJ} = 2 \int \frac{d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 d\tau_4}{r_{13}} [1 - P_{13}] \varphi_{jj'}^*(3|4) \varphi_{jj'}(3|4) \varphi_{ii'}^*(1|2) \varphi_{ii'}(1|2), \quad (16)$$

$$H_{ii'}^I = \int \varphi_{ii'}^*(1|2) H^I(1|2) \varphi_{ii'}(1|2) d\tau_1 d\tau_2. \quad (17)$$

Owing to the fulfilment of the conditions (9), (10), (11), (12) the configurations are normalized and orthogonal to each other. The matrix elements (14) of the operator differ from zero only for such two configurations, which differ at most in *two* two-electron orbitals.

In a way similar to that used in the calculation of the energy expression (4) [2, 3, 4] the matrix elements of the Hamilton operator can be easily calculated. There are three different cases:

1. for identical configurations (diagonal elements):

$$H_{KK} = H_{\dots ii \dots jj \dots} = H(0) + \sum_I h_{ii}^I + \sum_I \sum_{J \neq I} I_{ii'jj'}^{IJ}; \quad (18)$$

2. for configurations differing in *one* two-electron function:

$$H_{KL} = H_{\dots ii' \dots jj \dots} = h_{ii'}^I + 2 \sum_{J \neq I} I_{ii'jj'}^{IJ} = H_{ii'}^I; \quad (19)$$

3. for configurations differing in *two* two-electron functions:

$$H_{KL} = H_{\dots ii' \dots jj' \dots} = 2 I_{ii'jj'}^{IJ}. \quad (20)$$

If the electron pairs 1, 2, ..., I, ..., N have  $f_1 - 1, f_2 - 1, \dots, f_I - 1, \dots, f_N - 1$  excited states,

$$M = \prod_{I=1}^N f_I$$

various configurations can be formed in all. The further calculation is straightforward: calculating the energy with the linear combination  $\sum_K C_K \Phi_K$  and varying the coefficients  $C$  the well-known system of linear equations is obtained:

$$\sum_L H_{KL} C_L - E C_K = 0, \quad (K, L = 1, 2, 3, \dots, M),$$



which can be solved by iteration [5, 6, 8]. The Rayleigh—Schrödinger series can likewise be obtained by iteration, which is of the following form for the energy up to second order [5, 6, 9]:

$$E = H_{00} + \sum_{K>0} \frac{|H_{0K}|^2}{H_{00} - H_{KK}}$$

$H_{00}$  is the well-known energy expression (4), while the second term can be divided into two parts:

$$\sum_{K'>0} \frac{|H_{0K'}|^2}{H_{00} - H_{K'K'}} + \sum_{K''>0} \frac{|H_{0K''}|^2}{H_{00} - H_{K''K''}} \quad (21)$$

Here  $K'$  and  $K''$  denote the configurations which differ from the ground state in containing one and two excited states, respectively. With the above notations (21) can be expressed in the following way:

$$\sum_I \sum_{i>0} \frac{|H_{0i}^I|^2}{H_{00} - H_{ii}} + \sum_{I<J} \sum_{\substack{i>0 \\ j>0}} \frac{4|I_{0i0j}^{IJ}|^2}{H_{00} - H_{iijj}}$$

The first term is the polarization energy (this would be zero if the  $\varphi_{ii}$ 's were the exact eigenfunctions of the operator  $H^I$  or approximate eigenfunctions of that, in the usual sense of the variation theory), whereas the second term is LONDON's dispersion energy.

The result agrees with the one derived by McWEENY [5, 6] which can be explained by the fact that in the calculation of the density matrices he tacitly disregarded the requirements

$$\int \varphi_{ii}^*(1|2) \varphi_{i'i'}(1|3) d\tau_1 = 0, \quad \text{if } i \neq i'.$$

Using these in the first term of (21) only the expression  $\int \frac{d\tau_1 d\tau_2}{r_{12}} \varphi_{ii}^*(1|2) \varphi_{i'i'}(1|2)$  would be different from zero, and the second term would completely vanish.

The above results can be easily generalized for the case of three-, four-, or many-electron orbitals.

#### REFERENCES

1. E. KAPUY, *Acta Phys. Hung.*, **12**, 185, 1960.
2. A. C. HURLEY, J. E. LENNARD-JONES and J. A. POPLE, *Proc. Roy. Soc. A*, **220**, 496, 1953.
3. J. M. PARKS and R. G. PARR, *J. Chem. Phys.*, **28**, 335, 1958.
4. E. KAPUY, *Acta Phys. Hung.*, **9**, 237, 1958.
5. R. McWEENY, *Proc. Roy. Soc. A*, **253**, 242, 1959.
6. R. McWEENY, *Rev. Mod. Phys.*, **32**, 335, 1960.
7. E. KAPUY, *Acta Phys. Hung.*, **11**, 409, 1960.
8. P. O. LÖWDIN, *Advances in Chemical Physics*, Interscience Publ. N. Y. 1959, Vol. II; p. 270.
9. P. O. LÖWDIN, *J. Chem. Phys.*, **29**, 1396, 1951.





# PROBABILITY OF UNUSUAL ELEMENTS IN VERY BIG SOLAR FLARES CONNECTED WITH COSMIC RAY BURSTS

By

S. L. MALURKAR

COLABA OBSERVATORY, BOMBAY, INDIA\*

(Received 14. XI. 1960)

The five very big Chromospheric Eruptions or Solar Flares which gave rise to cosmic ray bursts recorded till now have been associated with unusually active solar regions with a long history of activity at the stage of the passage near the Central Meridian passage (C. M.) or at the stage when they were near the western limb of the sun [1]. The emitted particles would have to be positively charged and to retain their identity at the stage when being accelerated for days even in the sun's active region, the atoms would neither be on the side of low or very high atomic numbers. Considering Group II elements, Strontium and Barium suggest themselves whose abundances in the sun compared to that of Calcium, the usually considered element, would individually be about 0.03 per cent. These three years I have not been able to come across any published records of spectra taken during solar flares when the presence of the unusual elements could be verified.

If it be assumed that the very big five solar flares gave rise to similar emissions of atoms and the generality of solar flares were also uniform, the ratio of the very big solar flares which gave rise to cosmic ray bursts to the ordinary solar flares might indicate the ratio of abundance of the respective elements.

The data collected on a systematic and uniform basis of solar flares from Mar. 1940 to the end of Sept. 1957 were available [2] and have been used. The total number was 10,796. Even if a year's flares are left out at either end, it would still be of the order of 9,000. The ratio of five to nine to eleven thousand is of the same order as the abundance of Strontium or Barium to that of Calcium in the Sun (about three to ten thousand). While the surmise of unusual elements Sr and Ba in the very big solar flares connected with cosmic ray bursts is not conclusive, there appears to be a reasonable justification for it.

\* Former address. Now at Director's Research Laboratory, Indian Institute of Science, Bangalore 12, India.



## Number of Distinct Solar Flares (1940—1957)

Year	Qrt.	No.	Year	Qrt.	No.	Year	Qrt.	No.
1940	2nd	121	1949	1st	343	1956	1st	263
	3rd	102		2nd	260		2nd	483
	4th	48		3rd	400		3rd	759
1941	all	345		4th	238		4th	508
1942	„	222	1950	1st	132	1957	1st	381
1943	„	147		2nd	198		2nd	934
1944	„	44		3rd	193		3rd	1234
1945	„	132		4th	45			
1946	„	410	1951	1st	62			
1947	1st	147		2nd	238			
	2nd	344		3rd	111			
	3rd	438	4th	33				
	4th	103						
1948	1st	86	1952	„	171			
	2nd	317	1953	„	91			
	3rd	206	1954	„	15			
	4th	196	1955	„	294			

## REFERENCES

1. S. L. MALURKAR, *Acta Phys. Hung.*, **8**, 283, 1958.
2. *Quarterly Bull. Solar Activity*, International Astro. Union, Zürich (Eidgen, Sternwarte in Zürich).

**Cryophysics.** by K. MENDELSSOHN, F. R. S. Interscience Publishers, Inc., New York; Interscience Publishers Ltd., London, 1960. VIII + 183 pages.

The book gives a short but comprehensive account of low temperature physics. The author tries to give as complete a survey as possible, though detailed treatment — especially of the theoretical aspects of the phenomena — is missing.

The book is divided into eight chapters and two appendices. The first chapter on cryogenics treats of the various methods for the production of low temperatures including the classical process of liquefaction as well as magnetic cooling.

A short second chapter deals with the practical problems of temperature measurement taking into account even the most recent publications in this field.

The third chapter is devoted to the specific heat of solids, especially to the typical low temperature deviations in specific heat and includes the description of low temperature calorimetric methods.

The fourth chapter discusses somewhat more extensively the magnetic phenomena occurring at low temperatures. Ion paramagnetism, microwave paramagnetic resonance, antiferromagnetic phenomena, nuclear paramagnetism and the DE HAAS—VAN ALPHEN effect are described here on a phenomenological basis.

In the fifth chapter the transport phenomena are reviewed. The properties of electric conductivity at low temperature show changes depending very sensitively on the impurities, the magnetic field present, etc. These

phenomena are treated in a very compact, but clear form. The heat conduction in metals and in dielectrics is given in a similar manner.

The sixth chapter is devoted to the problem of superconductivity. A survey is given of the potential superconductors, the known superconductors including the phenomena concerning the transition point and the MEISSNER effect are dealt with in detail. In this chapter there are also some theoretical conclusions relating to superconductive electrodynamics, the depth of penetration and heat conduction in the superconductive range. A short sketch of the possible applications closes this chapter.

The helium problem is treated in the seventh chapter. The lambda-phenomenon, the superfluidity and other thermal effects are discussed, further the wave propagation in helium, its surface, i. e. film effects and helium three.

Chapter eight gives some information on the melting curves, the thermal expansion, the investigation of trapped free radicals, on bubble chambers and masers.

The end of the book contains two valuable appendices, one containing data on vapour pressure and the other the DEBYE function and DEBYE temperatures.

The book is a very useful guide for all interested or working in this new field of physics.

T. A. HOFFMANN



A kiadásért felel az Akadémiai Kiadó igazgatója

Műszaki szerkesztő: Farkas Sándor

A kézirat nyomdába érkezett: 1961. I. 4. — Terjedelem: 8 (A/5) ív, 15 ábra

---

1961.52684 — Akadémiai Nyomda, Budapest — Felelős vezető: Bernát György

The *Acta Physica* publish papers on physics, in English, German, French and Russian.  
The *Acta Physica* appear in parts of varying size, making up volumes.  
Manuscripts should be addressed to:

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

Correspondence with the editors and publishers should be sent to the same address.

The rate of subscription to the *Acta Physica* is 110 forints a volume. Orders may be placed with "Kultura" Foreign Trade Company for Books and Newspapers (Budapest I., Fő u. 32. Account No. 43-790-057-181) or with representatives abroad.

---

Les *Acta Physica* paraissent en français, allemand, anglais et russe et publient des travaux du domaine de la physique.

Les *Acta Physica* sont publiés sous forme de fascicules qui seront réunis en volumes.  
On est prié d'envoyer les manuscrits destinés à la rédaction à l'adresse suivante:

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

Toute correspondance doit être envoyée à cette même adresse.

Le prix de l'abonnement est de 110 forints par volume.

On peut s'abonner à l'Entreprise du Commerce Extérieur de Livres et Journaux «Kultura» (Budapest I., Fő u. 32. — Compte-courant No. 43-790-057-181) ou à l'étranger chez tous les représentants ou dépositaires.

---

«*Acta Physica*» публикуют трактаты из области физических наук на русском, немецком, английском и французском языках.

«*Acta Physica*» выходят отдельными выпусками разного объема. Несколько выпусков составляют один том.

Предназначенные для публикации рукописи следует направлять по адресу:

*Acta Physica, Budapest 502, Postafiók 24.*

По этому же адресу направлять всякую корреспонденцию для редакции и администрации.

Подписная цена «*Acta Physica*» — 110 форинтов за том. Заказы принимает предприятие по внешней торговле книг и газет «Kultura» (Budapest I., Fő u. 32. Текущий счет: № 43-790-057-181) или его заграничные представительства и уполномоченные.



## INDEX

- É. Kisdi-Koszó* and *L. Turi*: On a 2-MeV Microtron. — *E. Кишди-Косо* и *Л. Тури*:  
О микротроне на 2 MeV ..... 273
- Th. Neugebauer*: Über die Berechnung der Polarisationsenergie in Ionengittern. — *T. Найгбауэр*:  
Вычисление поляризационной энергии в решетках ионов ..... 279
- T. Tietz*: Paramagnetic Susceptibility of Conduction Electrons Calculated by the Aid  
of Analytical Formulas for the Theory of the Formation of Electron Groups in  
the Periodic System of Elements. — *T. Титц*: Определение парамагнитной  
восприимчивости электронов проводимости с помощью аналитических формул для  
случая теории образования электронных групп в периодической системе  
элементов ..... 291
- G. Heber*: Lehmann—Källén-Theorem und Geometrie der Minkowski-Welt. — *Г. Гебер*:  
Теорема Лемана—Келлена и геометрия пространства Минковского ..... 297
- T. Scharbert, D. Berényi* and *Gy. Máthé*: Further Gamma-Spectroscopic Inquiry into  
the Decay Scheme of Fe<sup>59</sup>. — *Т. Шарберт, Д. Берени* и *Г. Матэ*: Дальнейшие  
γ-спектроскопические исследования схемы распада Fe<sup>59</sup>. ..... 305
- Дь. Патаки*: О временной зависимости необратимых процессов в газе Кнудсена —  
*G. Pataki*: Time Dependence of Irreversible Processes in Knudsen Gas ..... 311
- F. Károlyházy*: Über Phasenoperatoren in der Strahlungstheorie. — *Ф. Карольгази*: О  
фазовых операторах в теории излучения ..... 321
- P. Gombás*: Zur Berechnung der Bildung von Elektronengruppen im periodischen  
System der Elemente — *П. Гомбаш*: Об определении образования электрон-  
ных групп в периодической системе элементов ..... 329
- Краткие сообщения — Brief Reports — Kurze Mitteilungen*
- J. Gordon* and *P. Szabó*: On the “Radius Effect” in Large BF<sub>3</sub> Counter Tubes ..... 333
- R. Gáspár*: Zur Theorie der Elektronenstruktur des Au-Atoms ..... 335
- E. Karpy*: Configuration Interaction for Wave Functions Built Up from Orthogonal  
Two-Electron Orbitals ..... 351
- S. L. Malurkar*: Probability of Unusual Elements in Very Big Solar Flares Connected  
with Cosmic Ray Bursts ..... 359
- Обзор книг — Book Review — Buchbesprechung*
- T. A. Hoffmann*: K. Mendelssohn: Cryophysics ..... 361