

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

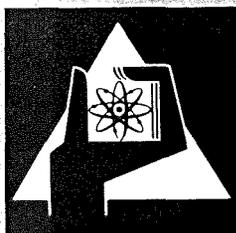
Mai 1973

KFK 1697

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

**Untersuchungen zur Neutronenthalisierung  
an flüssigem Ortho- und Para-Wasserstoff**

H. Würz



**GESELLSCHAFT  
FÜR  
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

**KARLSRUHE**

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1697

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Untersuchungen zur Neutronenthalisierung  
an flüssigem Ortho- und Para-Wasserstoff<sup>\*)</sup>

---

von

H. Würz

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

---

<sup>\*)</sup> von der Fakultät für Maschinenbau der Universität  
Karlsruhe genehmigte Dissertation



## Zusammenfassung

Die Neutronenthalisierungseigenschaften flüssiger Ortho-Para-Wasserstoffgemische der Temperatur  $T = 20,4 \text{ }^{\circ}\text{K}$  werden experimentell und theoretisch untersucht. Stationäre und asymptotische Neutronenausflussspektren wurden für mehrere  $op\text{H}_2$ -Mischungen im Bereich von 33%  $p\text{H}_2$  bis 98%  $p\text{H}_2$  gemessen. Außerdem wurden das erste Zeitmoment und die Varianz thermischer Neutronen für eine 77%  $p\text{H}_2$ - und eine 98%  $p\text{H}_2$ -Mischung experimentell bestimmt. Der Einfluß der Spinumklapp-Prozesse (inelastische Prozesse) - hervorgerufen durch die spinabhängige Neutron-Proton-Wechselwirkung - auf die Thermalisierungseigenschaften des  $\text{H}_2$ -Moleküls wird nachgewiesen. Die zur Messung der Zeitmomente angewandte Meßmethode wird beschrieben. Eine Diskussion der damit zusammenhängenden Meßprobleme rundet den experimentellen Teil der Arbeit ab.

Bei der theoretischen Interpretation der Meßergebnisse wird gezeigt, daß eine gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment erzielt wird, wenn bei der Berechnung des Streukerns die Dynamik der Flüssigkeit berücksichtigt wird.

## Neutron Thermalization in Liquid Ortho and Para-Hydrogen

### Abstract

The neutron thermalization properties of liquid ortho-para-hydrogen mixtures at  $T = 20,4 \text{ }^{\circ}\text{K}$  are investigated. For this purpose stationary and asymptotic neutron leakage spectra are measured for  $op\text{H}_2$ -mixtures ranging from 33%  $p\text{H}_2$  to 98%  $p\text{H}_2$ . Furthermore the first time moment and the variance of thermal neutrons were measured for two mixtures of 77%  $p\text{H}_2$  and 98%  $p\text{H}_2$ . The influence of spin reversal processes, due to the spin-dependent neutron proton interaction, on the thermalization properties of the  $\text{H}_2$  molecule is clearly shown.

By taking into account the dynamics of the liquid in calculating the scattering kernel good agreement between theory and experiment is achieved.



## Inhaltsverzeichnis

	Seite
I. Einleitung	1
I.1 Problemstellung	1
I.2 Wahl des kalten Moderators	6
I.3 Eigenschaften des H <sub>2</sub> -Moleküls	8
II. Bestimmung der Streukerne für flüssigen und festen Wasserstoff	14
II.1 Grundbegriffe aus der Theorie der inelastischen Neutronenstreuung	14
II.2 Berechnung des doppelt-differentiellen Streuquerschnitts für das H <sub>2</sub> -Molekülgas	18
II.3 Berechnung des doppelt-differentiellen Streuquerschnitts für festen und flüssigen Wasserstoff	21
II.4 Numerische Resultate und Vergleich mit experimentellen Daten	27
II.5 Berechnung der totalen Streuquerschnitte und Vergleich mit experimentellen Daten	30
III. Berechnung von Spektren und Zeitmomenten	32
III.1 Berechnung stationärer Spektren	32
III.2 Berechnung asymptotischer Spektren	37
III.3 Berechnung von zeitabhängigen Spektren	39
III.4 Berechnung von Zeitmomenten	43
IV. Die Meßmethode	47
IV.1 Wahl der Meßmethode	47
IV.2 Prinzip der Meßmethode	49

	Seite
V. Beschreibung der Meßapparatur	52
V.1 Die Neutronenquelle	52
V.2 Der Moderator	54
V.3 Das Flugzeitspektrometer	55
V.4 Der elektronische Teil der Meßanordnung	57
V.5 Besondere Einrichtungen für den flüssigen Wasserstoff	58
V.5.1 Ortho-Para-Analyse	58
V.5.2 H <sub>2</sub> -Sicherheitsanlage	61
VI. Die Messungen und ihre Auswertung	62
VI.1 Die Durchführung der Messungen	62
VI.2 Die Auswertung der Meßdaten	64
VI.2.1 Korrektur der Meßdaten	64
VI.2.2 Numerische Auswertung zur Bestimmung der Zeitmomente	68
VII. Die Ergebnisse der Messungen, Vergleich mit Rechnungen und Diskussion	73
VII.1 Asymptotische und zeitabhängige Spektren	73
VII.2 Zeitmomente	78
VII.3 stationäre Ausflußspektren	84
VIII. Zusammenfassung	87
Literaturverzeichnis	89
Anhang	A1
A 1 Auflösungskorrektur zur Bestimmung der Zeitmomente	A1
A 2 Auflösungskorrektur zur Bestimmung des asymptotischen Spektrums	A4
A 3 Beziehung zwischen $\phi(T,t)$ und $Z(T,t)$	A5

## I. Einleitung

### I.1 Problemstellung

Mit der Verwendung langsamer Neutronen zur Untersuchung der Struktur und der Dynamik der Materie kam die Forderung nach Forschungsreaktoren mit hohen thermischen Neutronenflüssen auf. Zur Erzeugung dieser Neutronenflüsse werden Reaktoren eingesetzt, die entweder im stationären Betrieb - sogenannte Hoch- und Höchstflußreaktoren [1] - oder aber im gepulsten Betrieb - reaktivitätsmodulierte Reaktoren und Booster [2] - arbeiten.

Gepulste Reaktoren dienen zur Erzeugung kurzer Impulse schneller Neutronen. Die Quellimpulse der schnellen Neutronen werden in Moderatoren, die das Core umgeben, durch Stöße mit den Moderatorkernen abgebremst und durch Thermalisierungsprozesse in einen thermischen Fluß konvertiert. Ein optimaler Moderator soll als Antwort auf einen injizierten Impuls schneller Neutronen einen hohen thermischen Neutronenfluß  $\phi(E)$  erzeugen. Gleichzeitig soll die zeitliche Verteilung der thermischen Neutronen schmal sein. Beide Forderungen werden am besten von wasserstoffhaltigen Moderatoren erfüllt.

Die an einem Target im Abstand L von dem Moderator registrierte energieabhängige Intensität I(E) ist bei gegebener Energieauflösung proportional zu [3,4]:

$$I(E) \sim \frac{\phi(E)}{\Delta t} \equiv \text{FOM} \quad \text{I.1}$$

FOM: Figure of Merit

$\phi(E)dE$ : thermischer Neutronenfluß, erzeugt durch den in den Moderator injizierten Impuls schneller Neutronen

$\Delta t$ : Zeitunsicherheit, Zeitintervall, in dem Neutronen der Energie E am Target erscheinen

Zu  $\Delta t$  trägt die endliche Pulsbreite  $\Delta t_p$  des Quellimpulses und die Breite  $\Delta t_{th}$  des von einem  $\delta$ -förmigen Quellimpuls erzeugten Neutronenpulses bei.  $\Delta t_{th}$  ist energieabhängig und kann durch die Varianz  $\tau(E)$  beschrieben werden [5]. Dabei gilt:

$$\tau(E) = \sqrt{\overline{t^2(E)} - \overline{t(E)}^2} \quad \text{mit} \quad \overline{t^n(E)} = \frac{\int_0^{\infty} t^n \phi(E, t) dt}{\int_0^{\infty} \phi(E, t) dt} \quad \text{I.2}$$

Die Zeitunsicherheit  $\Delta t$  ist über die Varianz energieabhängig und ist gegeben durch:

$$\Delta t(E) = \sqrt{\Delta t_p^2 + \tau^2(E)_{th}}$$

Da  $\Delta t_p$  durch den gepulsten Reaktor bestimmt wird und in der Regel sehr viel kleiner ist als  $\tau(E)$ , kann  $\Delta t(E) \approx \tau(E)$  gesetzt werden. Damit muß zur Erzielung einer optimalen Intensität am Ort des Targets die Größe

$$FOM = \frac{\phi(E)}{\tau^2(E)}$$

optimalisiert werden. Sowohl der Fluß  $\phi(E)$  als auch die Varianz  $\tau(E)$  sind Größen, die von den Brems- und Thermalisierungseigenschaften des Moderators abhängen. Im Bremsbereich bei Energien  $E \gg 15 \text{ kT}$  ( $T$  = Temperatur des Moderators) können die Moderatorkerne als frei betrachtet werden. Der epithermische Fluß ist proportional  $\frac{1}{E}$  und die Varianz ist proportional zu der Zeit, die ein Quellneutron benötigt, bis es auf die betrachtete Energie abgebremst ist.

Die Varianz der thermischen Neutronen ist durch Thermalisierungseffekte gegeben. Sie hängt von dem Absorptionsquerschnitt des Moderatormaterials und der Größe des durch Leakage verloren gegangenen Anteils der Neutronen ab.

Der Fluß  $\phi(E)$  und die Varianz  $\tau(E)$  können für einen bestimmten Moderator durch folgende Maßnahmen variiert werden:

1) Geometrische Optimierung:

Wenn der zeitliche Zerfall eines thermalisierten Neutronenfeldes in einem endlichen Moderator mit natürlicher Absorption dargestellt werden kann, als:

$$\phi(E, t) = \phi_0(E) e^{-\alpha t} \text{ mit } \alpha = \alpha_0 + D_0 B^2 - C B^4 + \text{höhere Glieder in } B^2$$

I.3

ist  $\tau(E)$  näherungsweise gleich  $1/\alpha$  und es genügt eine Kenntnis des thermischen Flusses als Funktion der Moderatorgröße zur Bestimmung einer optimalen FOM [4, 6].

2) Optimierung durch Moderatorvergiftung:

Wenn die Beziehung I.3 für einen reinen Moderator gilt, ist sie auch für einen Moderator, dem Absorber in homogener Form beigemischt sind, gültig. Sowohl  $\phi(E)$  als auch  $\tau(E)$  werden dabei im thermischen Energiegebiet reduziert; dabei bleibt das Verhältnis  $\phi(E)/\tau(E)$  annähernd konstant, solange die Bremszeit klein ist gegen  $1/\alpha$ . Auch für eine heterogene Vergiftung finden sich Resultate in der Literatur [4, 6]. Das Modulatorsystem kann jetzt größere Dimensionen erhalten. Dies erhöht die Intensität des epithermischen Neutronenflusses im gesamten Moderator und damit auch den thermischen Fluß in den nichtvergifteten Modorterteilbereichen.

Die Varianz der thermischen Neutronen ist durch die Größe der Moderatorteilbereiche gegeben.

3) Optimierung durch Verwendung kalter Moderatoren:

Kalte Moderatoren ermöglichen eine Erweiterung des Bremsbereichs zu kleinen Energien hin. Damit kann die Varianz auch bei thermischen Energien (25 meV) proportional zu der kleinen Bremszeit gemacht werden. Gleichzeitig wird das Maximum der thermischen Flußverteilung unter weitgehender Erhaltung der Spektrumsform zu kleinen Energien hin verschoben. Damit wird die Intensität der langsamen Neutronen erhöht. Für einen idealen Moderator, für den die thermische Spektrumsform als Maxwellverteilung darstellbar ist, ergibt sich der Intensitätsgewinnfaktor  $G$  für die langsamen Neutronen auf Grund einer Temperaturänderung des Moderators zu  $\overline{87}$ :

$$G(T_1, T_2, E) = \left(\frac{T_1}{T_2}\right)^2 \exp \left[ \frac{E}{k} \left( \frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right) \right] \quad \text{I. 4}$$

Dabei sind  $T_1$  und  $T_2$  die Moderatortemperaturen vor und nach der Abkühlung.

Dieser Intensitätsgewinn an langsamen Neutronen ist zur Durchführung von Experimenten zur Strukturuntersuchung der Materie durch inelastische Neutronenstreuung wichtig. Für die Anregung von Bewegungsfreiheitsgraden kommen Neutronenenergien von wenigen meV in Betracht, deshalb werden kalte Moderatoren als kalte Quellen zur Erzeugung hoher Flüsse langsamer Neutronen verwendet  $\overline{77}$ .

Kalte Moderatoren scheinen auch für eine Moderatoroptimalisierung besonders geeignet zu sein. Allerdings sollte ein kalter Moderator folgende Eigenschaften haben:

- a) Er sollte möglichst viele Freiheitsgrade der Bewegung bei kleinen Energieüberträgen besitzen, damit auch langsame Neutronen durch inelastische Prozesse Energie an das Gitter abgeben können, oder Translationsbewegungen sollten möglich sein, wie z.B. in Flüssigkeiten.
  
- b) Er sollte Freiheitsgrade der Bewegung besitzen, die durch das Kristallgitter nicht behindert werden.

Wenn diese Bedingungen nicht erfüllt sind, werden die Thermalisierungseigenschaften der kalten Moderatoren beeinträchtigt. Dies äußert sich darin, daß der Intensitätsgewinnfaktor  $G$  temperaturunabhängig wird und daß die Lebensdauer  $1/\alpha$  und damit auch die Varianz größere Werte annimmt, weil die Diffusionsparameter  $D_0$  und  $C$  in Gleichung I.3  $\langle \bar{v} \rangle$  mit sinkender Temperatur kleiner werden. Eine Abkühlung des Moderators auf beliebig kleine Temperaturen wird dann keinen optimalen Gewinn erbringen.

## I.2 Wahl des kalten Moderators

Im Hinblick auf die Verwendung kalter Moderatoren für gepulste Reaktoren wurden bisher festes Methan, festes Ammoniak, Eis und Polyäthylen untersucht [9-12].

Alle Moderatoren waren auf die Temperatur des flüssigen Stickstoffs ( $T = 77^{\circ}\text{K}$ ) abgekühlt.

Bei diesen Moderatoren sind die Flußintensität und die Spektrumsform ortsabhängig. Die Flußintensität erreicht ein Maximum in der Moderatormitte. Sie fällt zur Oberfläche des Moderators hin stark ab [8]. Dies ist eine Folge der kleinen energieabhängigen Transportweglänge  $\lambda_{tr}(E)$  der thermischen Neutronen in diesen Moderatoren. Die Spektrumsform ändert sich ebenfalls wegen der Energieabhängigkeit der Transportweglänge.  $\phi_{tr}(E)$  wächst mit kleiner werdender Energie und dies bedeutet, daß bevorzugt höherenergetische Neutronen ausfließen.

Aus Intensitätsgründen legt man bei gepulsten Reaktoren Wert auf eine große Extraktionsfläche für die thermischen Neutronen, d.h. man wird die Neutronen nicht aus der Mitte des Moderators, sondern von seiner Oberfläche extrahieren. Ein optimaler Moderator sollte damit eine hohe Ausflußintensität besitzen. Diese Forderung erfüllen flüssiger und fester Para-Wasserstoff. Für einen Parawasserstoff-Moderator (im folgenden mit  $p\text{H}_2$  bezeichnet) sind die Flußintensitäten in der Moderatormitte und an der Oberfläche ungefähr gleich [8]. Dies ist eine Folge des Streuquerschnittsverlaufs.  $\sigma_s(E)$  fällt unterhalb von ca. 23 meV stark ab und erreicht bei 10 meV den Wert von  $1,2 \frac{\text{barn}}{\text{H-Atom}}$ . Wenn die Neutronenenergie nicht ausreicht, um eine Rotationsanregung des Para-Moleküls zu erreichen (im Laborsystem sind dazu bei freien  $\text{H}_2$ -Molekülen 23 eV nötig [13]), wird der Streuquerschnitt proportional zum Quadrat der kohärenten Streulänge des Protons und damit sehr klein.

Dadurch wird der Moderator für Neutronen mit Energien  $< 23$  meV transparent. Zur Intensität des Ausflußspektrums bei der Energie  $E$  tragen Neutronen bei, die einen letzten Stoß in einer Schichtdicke von einigen  $\lambda_{tr}$  gemacht haben.  $\lambda_{tr}$  erreicht für einen  $pH_2$ -Moderator die Größenordnung des optimalen Moderatorradius [14], so daß das ganze Moderatorvolumen zum Ausfluß beiträgt.

Ein  $pH_2$ -Moderator bietet demnach bezüglich der Ausflußintensität des thermischen Neutronenflusses Vorteile gegenüber den zitierten kalten Moderatoren. Eine Optimierung setzt aber auch die Kenntnis der energieabhängigen Varianz voraus. Da diese Daten in der Literatur fehlen, wurden an einer 98%  $pH_2$ -Mischung die beiden ersten Zeitmomente, bei Extraktion der Neutronen von der Moderatoroberfläche, experimentell bestimmt. Wegen der, verglichen mit den in Frage kommenden Moderator dimensionen [14], großen freien Weglänge der langsamen Neutronen in dem 98%  $pH_2$ -Moderator kann ausgeschlossen werden, daß die Varianz durch Thermalisierungs- und Diffusionseffekte gegeben ist. Sie kann demnach nicht durch eine  $\alpha(B^2)$ -Beziehung der Form I.3 beschrieben werden, denn dies setzt die Existenz eines asymptotischen Zustandes voraus.

Eine Verwendung von festem  $pH_2$  bringt gegenüber flüssigem  $pH_2$  keine Intensitätserhöhung für die kalten Neutronen, da die Spektrumsform relativ unabhängig von der Moderatortemperatur ist, d.h. die Beziehung I.4 für den Gewinnfaktor  $G$  gilt hier nicht [8]. Die Thermalisierungseigenschaften werden für festen  $pH_2$  ungünstiger, da jetzt, obwohl die Rotationsbewegung des  $H_2$ -Moleküls auch im Gitter des Festkörpers als unbehindert anzusehen ist, keine Translationsbewegungen der Moleküle möglich sind, wie dies in der Flüssigkeit der Fall ist, in der Diffusionsbewegungen eine Rolle spielen [13].

Ortho-Para-Wasserstoffmischungen - im folgenden kurz mit  $opH_2$  bezeichnet - zeigen den bekannten, zu kleinen Energien

hin ansteigenden Verlauf des Streuquerschnitts, wie er durch die chemischen Bindungseffekte an inkohärent streuenden Moderatoren verursacht wird [13]. Die kleine energieabhängige Transportweglänge für die thermischen Neutronen bewirkt, daß für  $opH_2$ -Moderatoren die thermische Ausflußintensität gegenüber der Intensität in der Moderatormitte stark abfällt. Verlässliche Daten sind in der Literatur allerdings nicht zu finden, so daß experimentell ein Vergleich der Ausflußintensitäten eines 98%  $pH_2$ -Moderators und mehrerer  $opH_2$ -Moderator-Mischungen durchgeführt wurde. Außerdem wurden für einen 77%  $pH_2$ -Moderator zur Bestimmung der energieabhängigen Varianz die beiden ersten Zeitmomente an der Moderatoroberfläche experimentell bestimmt.

### I.3 Eigenschaften des $H_2$ -Moleküls

Die Moleküle des Wasserstoffisotops  $H_2$  existieren in zwei Modifikationen, die sich durch die Parität der Ortswellenfunktion  $\Psi_J$  und der Spinwellenfunktion  $\Psi_S$  unterscheiden. Bei Vernachlässigung einer Wechselwirkung zwischen dem Kernspin und dem Rest des Moleküls sowie zwischen den Kernspins benachbarter Moleküle ist die Gesamtwellenfunktion  $\Psi$  als Produkt darstellbar:  $\Psi = \Psi_J(r\vartheta\varphi)\Psi_S$ . Da die Protonen den Spin 1/2 haben, folgt, daß die Kerne der Fermistatistik gehorchen. Damit muß  $\Psi$  bezüglich einer Vertauschung der Protonen antisymmetrisch sein. Das Paramolekül, dessen Kernspins antiparallel sind (Gesamtspin  $S = 0$ ), besitzt eine antisymmetrische Spinwellenfunktion  $\Psi_S$  und muß damit eine symmetrische Ortswellenfunktion  $\Psi_J(r\vartheta\varphi)$  (gerade Rotationsquantenzahlen  $J = 0, 2, 4, \dots$ ) haben. Das Orthomolekül mit parallelen Kernspins ( $S=1$ ) besitzt eine symmetrische Spinwellenfunktion  $\Psi_S$  und damit eine antisymmetrische Ortswellenfunktion  $\Psi_J(r\vartheta\varphi)$  (ungerade Rotationsquantenzahlen  $J = 1, 3, 5, \dots$ ). Rotationsübergänge sind somit nur zwischen Zuständen mit geraden oder ungeraden Rotationsquantenzahlen möglich, d.h. es

gibt nur Para-Para- bzw. Ortho-Ortho-Übergänge. Ortho-Para-Übergänge sind nicht möglich. In Wirklichkeit ist die oben vernachlässigte Wechselwirkung zwischen den Kernspins benachbarter Ortho-Moleküle zu berücksichtigen. Dies führt zu einer endlichen Übergangswahrscheinlichkeit für einen Ortho-Para-Übergang. Dieser Übergang äußert sich als natürliche Konversion eines Ortho-Para-Gemisches. Durch die spinabhängige Wechselwirkung bei der Streuung von Neutronen an Wasserstoffmolekülen können außerdem sowohl Ortho-Para als auch Para-Ortho-Übergänge stattfinden.

Auf Grund der spinabhängigen Wechselwirkung ist die Streulänge  $a$  im Fermi'schen Pseudopotential durch einen Operatorausdruck zu ersetzen, der durch  $a_{\text{coh}}^2$  und  $a_1^2$  sowie durch die Spinmatrizen von Proton und Neutron gegeben ist.

Nach der Separation der Molekülschwerpunktsbewegung von der Relativbewegung der Protonen des Moleküls führt dieser Ansatz zu einem Wechselwirkungspotential, welches aus zwei, bezüglich dem Operator  $S$  ( $S=I_1+I_2$ , Gesamtspin des Moleküls) symmetrischen Gliedern und einem, bezüglich  $S$  unsymmetrischen Glied besteht. Dieses unsymmetrische Glied erzeugt bei Anwendung auf Zustände des Gesamtspins eine Änderung dieses Spins in  $S' = 1-S$  und erzeugt damit Ortho-Para- bzw. Para-Ortho-Übergänge  $[\bar{1}\bar{3}\bar{7}]$ .

Die Energie  $E_J$  der Rotationsniveaus ist gegeben durch  $E_J = 7,37 J(J+1)$  (meV). Ein Rotationsübergang  $J \rightarrow J'$  ist damit mit einer Energieänderung  $\Delta E_{J \rightarrow J'}^{\text{rot}} = 7,37 [\bar{J}(J+1) - J'(J'+1)]$  (meV) verbunden. Ein Ortho-Para-Übergang, z.B. von  $J = 1$  nach  $J = 0$  ist demnach mit einem Energiegewinn  $\Delta E_{1 \rightarrow 0}^{\text{rot}} = 14,74$  meV des Neutrons verbunden, denn eine Änderung der Symmetrie der Spinwellenfunktion  $\Psi_S$  von symmetrisch nach antisymmetrisch erzwingt eine Paritätsänderung der Ortswellenfunktion  $\Psi_J$ . Dasselbe gilt für einen Para-Ortho-Übergang, z.B. von  $J = 0$  nach  $J = 1$ , nur ist dazu dem Molekül durch das Neutron der Energiebetrag  $\Delta E = 14,74$  meV zuzuführen.

Bei der Streuung von Neutronen an Kernen mit Spin  $I$  treten zwei verschiedene Streulängen auf und zwar  $a_{\pm}$  bei paralleler

Anordnung von Kernspin und Neutronenspin und  $a_-$  bei anti-paralleler Anordnung. Linearkombinationen dieser beiden Streulängen ergeben die kohärente Streulänge  $a_{\text{coh}}$  und die inkohärente Streulänge  $a_i$  des Kerns.

$$a_{\text{coh}} = \frac{I+1}{2I+1} a_+ + \frac{I}{2I+1} a_- ; \quad a_i = \frac{\sqrt{I(I+1)}}{2I+1} (a_+ - a_-) \quad \text{I.5}$$

Da das  $\text{H}_2$ -Molekül von der geometrischen Konfiguration und von der Orientierung der Kernspins her ein einfaches Molekül ist, war es seit langem Gegenstand der Untersuchung der Neutron-Proton-Wechselwirkungsmechanismen [13,19]. Für die Streuung von Neutronen an Protonen ( $I = \frac{1}{2}$ ) erhält man aus I.5:

$$a_{\text{coh}} = \frac{1}{4} (3 a_+ + a_-) ; \quad a_i = \frac{\sqrt{3}}{4} (a_+ - a_-)$$

mit  $a_+$  = Tripletstreuung  
 $a_-$  = Singulettstreuung

Unter der Voraussetzung, daß die Neutronen unpolarisiert sind und daß die Spins der einzelnen Moleküle unkorreliert sind, können die elastischen Streuquerschnitte für Ortho- und Para-Moleküle für langsame Neutronen angegeben werden [13].

Man erhält:

$$\sigma_{\text{para}} = \frac{16}{9} \pi (3 a_+ + a_-)^2 \sim a_{\text{coh}}^2 \quad \text{I.6}$$

$$\sigma_{\text{ortho}} = \sigma_{\text{para}} + \frac{32}{9} \pi (a_+ - a_-)^2 \sim a_{\text{coh}}^2 + \frac{2}{3} a_i^2$$

Durch experimentelle Bestimmung von  $\sigma_{\text{para}}$  und  $\sigma_{\text{ortho}}$  ist damit eine Bestimmung der Streulängen  $a_+$  und  $a_-$  möglich [19].

In der folgenden Tabelle 1 sind die experimentellen Werte für die Streulängen  $a_+$  und  $a_-$  und die daraus folgenden Werte für die kohärente und die inkohärente Streulänge  $a_{\text{coh}}$  und  $a_i$  und deren Quadrate angegeben.

Tabelle 1

$a_+$	$a_-$	$a_{\text{coh}}$	$a_i$	$a_{\text{coh}}^2$	$a_i^2$
0,537	-2,373	-0,19	1,26	0,036	1,588
$10^{-12}$ cm				$10^{-24}$ cm <sup>2</sup>	

Mit den Daten für  $a_{\text{coh}}^2$  und  $a_i^2$  aus Tabelle 1 erhält man aus I.6 das Resultat, daß der Streuquerschnitt für freie PH<sub>2</sub>-Moleküle für Energien  $E < 23$  meV durch  $a_{\text{coh}}^2$  gegeben ist und damit kleine Werte annimmt. Der Streuquerschnitt des Ortho-H<sub>2</sub>-Moleküls ist proportional zum Quadrat der inkohärenten Streulänge  $a_i$  und zeigt damit das für inkohärente Streuer übliche Verhalten.

Die Wahrscheinlichkeit  $W_J$ , daß sich ein System bei der Temperatur  $T$  in einem bestimmten Zustand  $J$  (thermodynamischer Gleichgewichtszustand) mit der Energie  $E_J$  befindet, ist gegeben durch

$$W_J = \frac{\exp\{-E_J/kT\}}{\sum_J \exp\{-E_J/kT\}} \quad \text{I.7}$$

Bei  $T = 20,4^\circ\text{K}$  (Siedetemperatur des flüssigen Wasserstoffs) werden demnach die Para-Moleküle den Rotationsgrundzustand  $J = 0$  besetzen. Eine Besetzung des Rotationsgrundzustandes  $J = 1$  des

Orthogrundzustandes ist nach Gleichung I.7 unwahrscheinlich. Ein Wasserstoffgas bei  $T = 293^{\circ}\text{K}$  besteht aus 75% Ortho- und 25% Para-Wasserstoff. Bei der Verflüssigung bleibt diese OP-Zusammensetzung zunächst erhalten, im Gegensatz zur Folgerung aus Gleichung I.7, d.h. die Gesamtheit der Ortho-Moleküle bildet bei  $T = 20,4^{\circ}\text{K}$  ein System, das sich nicht im thermodynamischen Gleichgewicht befindet.

Das Bestehen eines thermodynamischen Gleichgewichtszustandes in einem System führt in der Neutronenthalisierung auf die Gültigkeit des Prinzips des detaillierten Gleichgewichts. Dieses Prinzip besagt, daß eine, mit einem Moderator im Gleichgewicht befindliche Neutronenmenge durch Stoßprozesse im Mittel keinen Energiegewinn erfährt. Damit geht in einem unendlich ausgedehnten Moderator mit  $\frac{1}{v}$ -Absorption ( $B^2 = 0$ ,  $\Sigma_a(E) \sim \frac{1}{v}$ ) die Neutronenverteilung für lange Zeiten nach dem Einschub der Quellneutronen (asymptotischer Zustand) in eine Maxwellverteilung bei der Temperatur des Moderators über. Ein Test der Thermalisierungsmodelle, die für eine zuverlässige Berechnung der Energieverteilung der Neutronen in Reaktoren wichtig sind, ist damit nicht möglich. Man ist dann auf eine Untersuchung der zeitlichen Änderung der Spektrumsform vor Erreichen des asymptotischen Zustandes angewiesen [16].

Eine op-H<sub>2</sub>-Mischung bietet die Möglichkeit, die Neutronenthalisierung an einem System zu untersuchen, für welches das Prinzip des detaillierten Gleichgewichts nicht gültig ist. Die Verletzung dieses Prinzips für Ortho-H<sub>2</sub>-Moleküle sollte für flüssige op-H<sub>2</sub>-Mischungen zur Folge haben, daß die Spektrumsform der thermischen Neutronen stark von einer Maxwellverteilung abweicht. Damit liefert die Spektrumsform, die sich lange Zeiten nach dem Einschub der Quellneutronen im Moderator bildet, Aussagen über die Güte der Thermalisierungsmodelle für flüssigen Wasserstoff.

Obwohl flüssiger Wasserstoff häufig als Moderatormaterial für kalte Quellen benutzt wird, existiert bislang nur ein

theoretisches Gasmodell zur Beschreibung der Streueigenschaften des freien Wasserstoffmoleküls [17,18].

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird dieses Gasmodell durch Berücksichtigung eines experimentell bestimmten Gitterfrequenzspektrums  $\rho(\beta)$  [20] zur Beschreibung der Dynamik des Festkörpers verbessert. Durch Berücksichtigung einer Diffusionsbewegung in der Flüssigkeit [15] kann dieses Festkörpermodell auch auf Flüssigkeiten angewandt werden.

## II. Bestimmung der Streukerne für flüssigen Wasserstoff

### II.1 Grundbegriffe aus der Theorie der inelastischen Neutronenstreuung

Im folgenden wird kurz der gut entwickelte Formalismus zur Berechnung der Neutronenstreuung, soweit er in dieser Arbeit benutzt wird, ohne Ableitung der Formeln erläutert. Für eine allgemeine Formulierung mit umfassender Darstellung siehe [21].

Der doppeltdifferentielle Streuquerschnitt  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  kann als zweifaches Fourierintegral der van Hove Korrelationsfunktion  $G(\underline{r}, t)$  geschrieben werden [22]. Bei Vernachlässigung von kollektiven Phänomenen (Interferenzeffekte) kann  $G(\underline{r}, t)$  in inkohärenter Näherung durch den Selbstanteil  $G_s(\underline{r}, t)$  dargestellt werden. Dann folgt für  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  für die spinunabhängige Streuung von Neutronen:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon} = \left( a_i^2 + a_{\text{coh}}^2 \right) \frac{k}{k_0} \frac{1}{2\pi} \left( \int d\underline{r} dt e^{i(\underline{k} \cdot \underline{r} - \epsilon t)} G_s(\underline{r}, t) \right) \quad \text{II.1}$$

Dabei bedeuten: $\underline{k}_0, \underline{k}$	Wellenvektor des einfallenden und des gestreuten Neutrons
$E_0, E$	Energie des einfallenden und des gestreuten Neutrons
$\epsilon = E_0 - E$	Energieübertrag bei dem Stoß
$\hbar \underline{k} = (\underline{k}_0 - \underline{k}) \hbar$	Impulsübertrag bei dem Stoß
$a_i^2$	inkohärente Streulänge des Atoms
$a_{\text{coh}}^2$	kohärente Streulänge des Atoms

Eine vereinfachte Darstellung von  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  in inkohärenter Näherung (Vernachlässigung von Interferenzeffekten) ist für wasserstoffhaltige Moderatoren zulässig, da Interferenzeffekte proportional zu  $a_{\text{coh}}^2$  sind und  $a_i^2 \gg a_{\text{coh}}^2$  gilt.

$G_s(\underline{r}, t)$  ist im allgemeinen eine komplexe Funktion, deren Real- und Imaginärteil über das sogenannte Fluktuation-dissipationstheorem miteinander verknüpft sind [22].

Für  $G_s(\underline{r}, t)$  lassen sich zwei Eigenschaften angeben:

1) Da  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon}$  eine reelle Funktion ist, folgt aus II.1:

$$G_s^*(\underline{r}, t) = G_s(-\underline{r}, -t)$$

Der Stern bedeutet dabei den Übergang zum konjugiert komplexen.

2) Da das Prinzip des detaillierten Gleichgewichts gilt, folgt:

Durch Transformation der Zeit ( $t \rightarrow t + \frac{i\hbar}{2k_B T}$ ) kann die komplexe Funktion  $G_s(\underline{r}, t)$  in eine reelle Funktion umgewandelt werden.

Damit aber erlaubt  $G_s(\underline{r}, t)$  eine einfache physikalische Interpretation. Die reelle Funktion  $G_s(\underline{r}, t)$  gibt nämlich die Wahrscheinlichkeit dafür an, daß ein zur Zeit  $t = 0$  am Ort  $\underline{r} = 0$  vorhandenes Teilchen zur Zeit  $t$  am Ort  $\underline{r}$  gefunden wird. Unter der Annahme einer Gaußverteilung von  $G_s(\underline{r}, t)$  [23] bezüglich  $\underline{r}$  kann die Fouriertransformation von  $G_s(\underline{r}, t)$  bezüglich  $\underline{r}$  ausgeführt werden.

Man erhält:

$$\chi_s(\kappa, t) = \int_0^\infty e^{i\kappa \cdot \underline{r}} G_s(\underline{r}, t) d\underline{r} = e^{-\kappa^2 \Gamma(t)} \quad \text{II.2}$$

mit

$$G_s(\underline{r}, t) = \left( \frac{1}{2\pi\Gamma(t)} \right)^{3/2} \exp \left[ - \frac{r^2}{2\Gamma(t)} \right]$$

und

$$\Gamma(t) = \frac{1}{3} \int_0^\infty r^2 G_s(\underline{r}, t) d\underline{r} \quad *)$$

---

\*)  $\Gamma(t)$  enthält die gesamte Information, die zur Beschreibung der Dynamik des Systems nötig ist.  $\Gamma(t)$  hängt eng mit der Frequenzverteilungsfunktion  $\rho(\beta)$  zusammen.  $\rho(\beta)$  charakterisiert die Dichte der Bewegungsmoden im System.

$\Gamma(t)$  gibt dabei die mittlere quadratische Strecke an, die ein Teilchen in einem Zeitintervall  $t$  zurücklegt. Die Größe  $\chi_s(\underline{x}, t)$  wird in der Literatur als intermediäre Streufunktion bezeichnet. Setzt man II.2 in Gleichung II.1 ein, so erhält man:

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon} &= \left( a_i^2 + a_{\text{coh}}^2 \right) \frac{\hbar}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-\kappa^2 \Gamma(t)} e^{-i\epsilon t} \\ &= \frac{a_i^2 + a_{\text{coh}}^2}{k_B T} \frac{k}{k_0} e^{-\frac{\beta}{2}} S_0(\alpha, \beta) \end{aligned} \quad \text{II.3}$$

mit  $\alpha$  Impulsübertrag in dimensionslosen Einheiten

$$\alpha = \frac{\hbar^2 \kappa^2}{2Mk_B T} = \frac{1}{k_B T} (E_0 + E - 2\sqrt{E_0 E} \cos \Theta)$$

$\beta$  Energieübertrag in dimensionslosen Einheiten

$$\beta = - \frac{\epsilon}{k_B T} \quad (k_B T \text{ thermische Energie eines Teilchens der Temperatur } T)$$

$\Theta$  = Streuwinkel im Laborsystem, Winkel zwischen der Richtung des einfallenden und des gestreuten Neutrons

$S_0(\alpha, \beta)$  ist das in  $\beta$  symmetrische Streugesetz [15]. Nach Gleichung II.3 kann bei bekannten  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  durch Fouriertransformation  $\Gamma(t)$  gewonnen werden. Fouriertransformationen sind von der numerischen Genauigkeit her schwierig durchzuführen, da die experimentell ermittelten  $S_0(\alpha, \beta)$ -Werte durch die Meßapparatur auf einen endlichen Teilbereich der  $\alpha, \beta$ -Ebene beschränkt sind.

Diese Schwierigkeit wird bei dem von Egelstaff angegebenen Extrapolationsverfahren [15] umgangen. Durch Grenzwertbildung führt eine experimentelle Bestimmung von  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  direkt auf die Frequenzverteilungsfunktion  $\rho(\beta)$ .

$\rho(\beta)$  gibt die Wahrscheinlichkeit für einen Energieübertragungsprozeß in einem System an und ergibt sich aus  $S_0(\alpha, \beta)$  nach der Beziehung:

$$\rho(\beta) = 2\beta \sinh \frac{\beta}{2} \lim_{\alpha \rightarrow 0} \frac{S_0(\alpha, \beta)}{\alpha} \quad \text{II.4}$$

Mit dem nach Gleichung II.4 aus den experimentellen Daten gewonnenen  $\rho(\beta)$  kann über

$$S_0(\alpha, \beta) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp \left[ -\alpha w(t) + i\beta t \right] \quad \text{II.5}$$

mit

$$w(t) = \int_0^{\infty} d\beta \left[ \cosh \frac{\beta}{2} - \cos \beta t \right] \frac{\rho(\beta)}{\beta \sinh \beta/2} \quad \text{II.6}$$

ein neues  $S_0(\alpha, \beta)$  bestimmt werden.  $w(t)$  ist proportional zu  $\Gamma(t)$  und damit physikalisch interpretierbar. Der Vorteil der Extrapolationsmethode liegt darin, daß über die Beziehungen II.4 bis II.6 eine iterative Verbesserung des gewonnenen  $S_0(\alpha, \beta)$  möglich ist. Damit erhält man schließlich aus einer Messung von  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon}$  in einem begrenzten Energie- und Impulsübertragungsgebiet eine iterierte Frequenzverteilungsfunktion  $\rho(\beta)$ .

Für die Berechnung von  $S_0(\alpha, \beta)$  aus einem vorgegebenen  $\rho(\beta)$  nach den Beziehungen II.5 und II.6 steht das Programm LEAP zur Verfügung [24].  $S_0(\alpha, \beta)$  wird in einem großen Bereich der  $(\alpha, \beta)$ -Ebene durch eine Phononenentwicklung berechnet. Sechs Terme werden exakt berechnet, während die höheren Glieder durch eine asymptotische Entwicklung nach EDGEWORTH approximiert werden. Für große  $\alpha$ -Werte wird eine "short collision time" Näherung durchgeführt [25].

Durch Winkelintegration von  $S_0(\alpha(\mu), \beta)$  können die Streukerne  $\sigma_n(E_0 \rightarrow E)$  nach

$$\sigma_n(E_0 \rightarrow E) = \frac{a_i^2 + a_{coh}^2}{k_B T} \int_{-1}^1 \left( \frac{E}{E_0} \right) e^{-\beta/2} S_0(\alpha(\mu), \beta) P_n(\mu) d\mu \quad \text{II.7}$$

berechnet werden.

In II.7 bedeutet  $P_n(\mu)$  Legendrepolynom n-ter Ordnung mit  $\mu = \cos$  des Streuwinkels. Das Programm KAPIXE berechnet die Streukerne  $\sigma_n(E_0 \rightarrow E)$  nach Beziehung II.7 aus  $S_0(\alpha, \beta)$ .

## II.2 Berechnung des doppeltdifferentiellen Streuquerschnitts für das H<sub>2</sub>-Molekül

Berechnungen des doppeltdifferentiellen Streuquerschnitts  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  für H<sub>2</sub>-Moleküle finden sich in [13, 17, 18].

In [13] wird die Spinwechselwirkung gekoppelt mit den Rotationsübergängen im Rahmen einer quantenmechanischen Rechnung für freie ruhende H<sub>2</sub>-Moleküle berücksichtigt.

In [17, 18] werden zusätzlich Translationsbewegungen des freien H<sub>2</sub>-Moleküls und in [18] außerdem noch Schwingungsbewegungen ( $E_n = n\hbar\omega = n \cdot 0.546 \text{ eV}$ ) im Rahmen des Gasmodells berücksichtigt.

Bei Vernachlässigung der Molekülschwingungen ist  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  als Produkt zweier Faktoren  $F_l(\underline{x})$  und  $S(\underline{x}, \epsilon - \Delta E_l^{\text{rot}})$  darstellbar, von denen der erste die Wahrscheinlichkeit für einen Rotationsübergang im Molekül beschreibt. Dieser Faktor ist von dem Impulsübertrag  $\underline{x}$  und den Streulängen der Kerne abhängig und wird im Rahmen des Modells des starren Rotators behandelt. Der zweite Faktor beschreibt die Dynamik des H<sub>2</sub>-Moleküls und ist vom Energieübertrag  $\epsilon$  und vom Impulsübertrag  $\underline{x}$  abhängig.  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  kann demnach geschrieben werden:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon} = 4 \frac{k}{k_0} \sum_{l=1}^N F_l(\underline{x}) S(\underline{x}, \epsilon - \Delta E_l^{\text{rot}}) \quad \text{II.8}$$

$S(\underline{\kappa}, \epsilon)$  hängt mit dem dimensionslosen Streugesetz  $S_0(\alpha, \beta)$  zusammen über:

$$S(\underline{\kappa}, \epsilon) = \frac{e^{-\beta/2}}{k_B T} S_0(\alpha, \beta)$$

$S(\underline{\kappa}, \epsilon)$  gibt das Molekülstreugesetz an. Für ein Gas ist  $S(\underline{\kappa}, \epsilon)$  gegeben durch:

$$S(\underline{\kappa}, \epsilon - \Delta E_l^{\text{rot}}) = \sqrt{\frac{M}{\pi h^2 \kappa^2 k_B T}} \exp \left[ - \left( \frac{h^2 \kappa^2}{4M} + \Delta E_l^{\text{rot}} - \epsilon \right)^2 / \frac{h^2 \kappa^2 k_B T}{M} \right] \quad \text{II.8a}$$

mit

$$\Delta E_l^{\text{rot}} = \begin{cases} 0.00737 \, l(l-1) & \text{für para-H}_2 \\ -0,01474 + 0.00737 \, l(l-1) & \text{für ortho-H}_2 \end{cases}$$

$$\text{und } F_l(\kappa) = \begin{cases} a_l^{\text{para}} (2l-1) j_{l-1}^2 \left( \frac{R}{2} \kappa \right) \\ a_l^{\text{ortho}} \left[ l j_l^2 \left( \frac{\kappa R}{2} \right) + (l-1) j_{l-2}^2 \left( \frac{\kappa R}{2} \right) \right] \end{cases}$$

wobei

$$a_l^{\text{para}} = \begin{cases} a_{\text{coh}}^2 & l = 1, 3, 5, \dots \\ a_i^2 & l = 2, 4, 6, \dots \end{cases}$$

$$a_l^{\text{ortho}} = \begin{cases} a_{i/3}^2 & l = 1, 3, 5, \dots \\ a_{\text{coh}}^2 + \frac{2}{3} a_i^2 & l = 2, 4, 6, \dots \end{cases}$$

$j_l \left( \frac{\kappa R}{x} \right)$  sind die sphärischen Besselfunktionen. Sie sind wie folgt definiert:

$$j_0(x) = \frac{\sin x}{x}; \quad j_1(x) = \frac{\sin x}{x^2} - \frac{\cos x}{x};$$

$$j_{l+1}(x) = \frac{2l+1}{x} j_l(x) - j_{l-1}(x)$$

- R mittlerer Protonenabstand im H<sub>2</sub>-Molekül = 0,75 Å  
 M Protonenmasse = 1,67 · 10<sup>-24</sup> g  
 a<sub>i</sub><sup>2</sup> inkohärente Streulänge  
 a<sub>coh</sub><sup>2</sup> kohärente Streulänge

In der Form II.8 erlaubt die Beziehung für  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  eine einfache anschauliche Interpretation. Die einzelnen Summanden in der Summe über  $l$  liefern die Teilquerschnitte  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  für die Übergänge zwischen den Rotationsniveaus  $0 \rightarrow l-1$  und  $1 \rightarrow l-1$ .

Der Übergang  $0 \rightarrow l-1$  beschreibt für gerade  $l-1$  einen Para-Para-Übergang und für ungerade  $l-1$  einen Para-Ortho-Übergang. Der Übergang  $1 \rightarrow l-1$  beschreibt für gerade  $l-1$  einen Ortho-Para-Übergang und für ungerade  $l-1$  einen Ortho-Ortho-Übergang. Die Teilquerschnitte für  $l=1$  und 2 sind in der Tabelle 2 zusammen mit der Übergangsart dargestellt. Die Zahlen  $0 \rightarrow 0$  usw. geben die Rotationsquantenzahlen vor und nach dem Streuprozeß an.

Tabelle 2

$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$		Übergangsart
$0 \rightarrow 0$	$4 \frac{k}{k_0} a_{coh}^2 j_0^2 \left(\frac{\kappa R}{2}\right) S(\underline{\kappa}, \epsilon)$	Para-Para
$0 \rightarrow 1$	$4 \frac{k}{k_0} 3 a_i^2 j_1^2 \left(\frac{\kappa R}{2}\right) S(\underline{\kappa}, \epsilon - 0.0147)$	Para-Ortho
$1 \rightarrow 0$	$4 \frac{k}{k_0} \frac{a_i^2}{3} j_1^2 \left(\frac{\kappa R}{2}\right) S(\underline{\kappa}, \epsilon + 0.0147)$	Ortho-Para
$1 \rightarrow 1$	$4 \frac{k}{k_0} \left( a_{coh}^2 + \frac{2}{3} a_i^2 \right) \left( 2 j_2^2 \left(\frac{\kappa R}{2}\right) + j_0^2 \left(\frac{\kappa R}{2}\right) \right) S(\underline{\kappa}, \epsilon)$	Ortho-Ortho

Solange die Relativgeschwindigkeit zwischen Neutron und Proton nicht ausreicht, um dem Neutron einen Energieübertrag  $\epsilon = 14.7$  meV an das Molekül zu ermöglichen, ist der Teilquerschnitt  $\frac{d^2\sigma_{0 \rightarrow 0}}{d\Omega d\epsilon}$  proportional zum Quadrat der kohärenten Streulänge  $a_{coh}^2$  und demzufolge klein. Der pH<sub>2</sub>-Streuquerschnitt steigt mit Einsetzen der Spinumklappprozesse steil an, da diese Prozesse proportional zu  $a_i^2$  sind.

Der Verlauf des Ortho H<sub>2</sub>-Streuquerschnitts zeigt den infolge chemischer Bindungseffekte bekannten Anstieg zu kleinen Energien hin.

Zur Berechnung von  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  nach Beziehung II.8 existiert ein Rechenprogramm [26], welches bis zu 15 Rotationsübergänge ( $l = 1, \dots, 15$ ) und bis zu 5 Schwingungsniveaus berücksichtigt. Ein Vergleich von gemessenen integralen Größen und solchen, die mit einem Streukern, dem das Gasmodell zugrunde liegt, berechnet wurden, zeigt, daß das Gasmodell die Thermalisierungseigenschaften des flüssigen Wasserstoffs der Temperatur  $T = 20,4 \text{ }^\circ\text{K}$  überschätzt. Deshalb wurde versucht, für  $S(\underline{\chi}, \epsilon)$  ein realistisches Modell zu verwenden, welches die Dynamik der Flüssigkeit zu beschreiben vermag.

### II.3 Bestimmung des doppelt-differentiellen Streuquerschnitts für festen und flüssigen Wasserstoff

Das Modell, welches der Berechnung von  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  für festen und flüssigen Wasserstoff zugrunde liegt, beruht auf folgenden Annahmen:

- 1) Das Streugesetz  $S(\underline{\chi}, \epsilon)$  kann für flüssigen und ebenfalls festen Wasserstoff mit Hilfe einer symmetrischen "Phononen"-Frequenzverteilungsfunktion  $\rho(\beta)$  berechnet werden.
- 2) Die Rotation (ebenso die Schwingung) der Moleküle ist frei und nicht mit dem Phononenspektrum gekoppelt.

Die Annahme 1) gilt für das Ortho- $\text{H}_2$ -Molekül, da sich  $\rho(\beta)$  nur auf das Spektrum der Gitterschwingungen bezieht, die sich sicher in einem thermodynamischen Gleichgewichtszustand befinden. Die Annahme 2) (freie Molekülrotation) ist eine zulässige Vereinfachung. Ausgehend von theoretischen Untersuchungen von Elliot und Hartmann [27] konnten Egelstaff, Haywood und Webb [28] eine Linienverbreiterung des  $1 \rightarrow 0$  Übergangs (ortho-para) und Schott [20] eine Linienverbreiterung des  $0 \rightarrow 1$  (para-ortho) Übergangs bei festem Wasserstoff experimentell nachweisen.

Diese Linienverbreiterung ist abhängig von der Ortho-H<sub>2</sub>-Konzentration. Sie wird für steigende oH<sub>2</sub>-Konzentration größer und ist in Wirklichkeit eine Aufspaltung des entarteten J = 1 Zustands durch eine anisotrope Quadrupol-Quadrupol-Wechselwirkung benachbarter Ortho-Moleküle.

Elliot und Hartmann [27] geben für das Quadrat der mittleren Linienbreite des 1→0 Übergangs die folgende Beziehung an:

$$\overline{\Delta\epsilon^2}_{1\rightarrow 0} = 0,42 C$$

$\Delta\epsilon$  in meV,  $C \cdot 100 =$  Orthokonzentration in Prozent

Dabei wurde entsprechend dem hcp Gitter des Wasserstoffs die Wechselwirkung der 12 nächsten Nachbarn berücksichtigt.

Wenn die Linienform durch eine Gaußkurve approximiert wird, ist die Halbwertsbreite der Gaußkurve gegeben durch:

$$\Delta E = 2,358 \sqrt{\overline{\Delta\epsilon^2}}$$

Damit erhält man für festen nH<sub>2</sub><sup>\*)</sup> (75% Ortho H<sub>2</sub>) eine Halbwertsbreite  $\Delta E = 1,32$  meV.

Für flüssigen Wasserstoff ist eine eindeutige Linienverbreiterung als Funktion der Ortho-Konzentration experimentell nicht nachweisbar, wegen der Diffusionsverbreiterung sowohl des 1→0 als auch des 0→1 Peaks. Wegen der geringen Linienbreite des 1→0 Übergangs (kleiner als 1.3 meV), verglichen mit der zur Rotationsanregung nötigen Energie von  $\Delta E_{1\rightarrow 0}^{\text{rot}} = 14.74$  meV erscheint es gerechtfertigt, die Rotation der Moleküle als frei zu betrachten. Die Beziehung II.8 für  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  bleibt dann formal weiterhin gültig.  $S(\underline{\chi}, \epsilon)$  ist nur

---

\*) Normal-H<sub>2</sub> (nH<sub>2</sub>) besteht aus 75% Ortho-H<sub>2</sub> und 25% Para-H<sub>2</sub>.

durch ein  $S_{\text{Gitter}}(\chi, \epsilon)$  zu ersetzen, welches die Dynamik des Systems besser beschreibt.

Die Annahme 2) (Unabhängigkeit zwischen Gitterdynamik und Rotation) bedeutet, daß die intermediäre Streufunktion  $\chi_0(\alpha, t)$  als Produkt der intermediären Streufunktion  $\chi_{\text{rot}}(\alpha, t)$  für die Rotationsbewegung und der intermediären Streufunktion  $\chi_{\text{Gitter}}(\alpha, t)$  für das Molekülgitter geschrieben werden kann:

$$\chi_0(\alpha, t) = \chi_{\text{rot}}(\alpha, t) \chi_{\text{Gitter}}(\alpha, t) \quad \text{II.9}$$

Unter Benützung des Faltungstheorems für Fouriertransformationen erhält man für das Streugesetz  $S_0(\alpha, \beta)$ :

$$S_0(\alpha, \beta) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \chi_{\text{rot}}(\alpha, t) \chi_{\text{Gitter}}(\alpha, t) e^{i\beta t} dt = \int_{-\infty}^{\infty} S_{\text{rot}}(\alpha, \beta') S_{\text{Gitter}}(\alpha, \beta - \beta') d\beta' \quad \text{II.10}$$

Da die Beziehung II.8 formal erhalten bleibt folgt, daß  $S_{\text{rot}}(\alpha, \beta)$  darstellbar ist als:

$$S_{\text{rot}}(\alpha, \beta - \Delta\beta_l) = F_l(\alpha) \delta(\beta - \Delta\beta_l)$$

mit

II.11

$$\Delta\beta_l = - \frac{\Delta E_l^{\text{rot}}}{kT}$$

Das mit dem Programm LEAP [24] für festen Wasserstoff aus einem  $\rho(\beta)$  berechnete Streugesetz  $S_g(\alpha, \beta)$  enthält nur das durch inelastische Prozesse bezüglich des Phononenspektrums erzeugte Streugesetz. Elastische Prozesse werden über den Debye-Waller-Faktor, der die Wahrscheinlichkeit für diesen Prozeß angibt, berücksichtigt. Das Streugesetz des Molekül-

gitters  $S_{\text{gitter}}(\alpha, \beta)$  kann demnach geschrieben werden:

$$S_{\text{gitter}}(\alpha, \beta) = e^{-2W} \delta(\beta) + S_g(\alpha, \beta) \quad \text{II.12}$$

mit

$$2W = \alpha k_B T \int_0^{\infty} \coth \frac{\beta}{2} \frac{\rho(\beta) d\beta}{\beta}$$

Durch Faltung von II.11 mit dem Molekülstreugesetz  $S_{\text{gitter}}(\alpha, \beta)$  nach Gleichung II.10 erhält man für  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon}$  für festen Wasserstoff:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon} = 4 \frac{k}{k_0} \frac{1}{k_B T} \sum_{\ell=1}^N F_1(\alpha) e^{-\frac{\beta - \Delta\beta_{\ell}}{2}} \left[ e^{-2W} \delta(\beta - \Delta\beta_{\ell}) + S(\alpha, \beta - \Delta\beta_{\ell}) \right] \quad \text{II.13}$$

Durch die Substitution:

$$S_{\text{gitter}}(\underline{\chi}, \varepsilon - \Delta E_{\ell}) = \frac{1}{k_B T} e^{-\frac{\beta - \Delta\beta_{\ell}}{2}} \left[ e^{-2W} \delta(\beta - \Delta\beta_{\ell}) + S_g(\alpha, \beta - \Delta\beta_{\ell}) \right] \quad \text{II.13a}$$

erhält Gleichung II.13 dieselbe Form wie Gleichung II.8. Dabei ist das Translationsstreugesetz  $S(\underline{\chi}, \varepsilon)$  durch das Streugesetz  $S_{\text{gitter}}(\underline{\chi}, \varepsilon)$  des  $H_2$ -Molekülgitters ersetzt worden.

Gleichung II.13 erlaubt eine anschauliche Interpretation. Solange  $\ell = 1$  ist (keine Rotationsanregung  $\Delta E = 0$ , keine Spinumklappereignisse), wird das Neutron am Para-Wasserstoff inelastisch durch Austausch von Phononen und elastisch gestreut. Die Streuprozesse sind proportional zur kohärenten Streulänge; damit ist der Streuquerschnitt klein.

Für  $l = 2$  kann das Neutron durch einen inelastischen Prozeß einen Para-Ortho-Übergang erzwingen (Verlust des Energiebetrages  $\Delta E = 14,74$  meV) und anschließend kann bezüglich des Molekül-Gitters ein Phononenaustausch und/oder ein elastischer Prozeß ablaufen.

Am Ortho-H<sub>2</sub>-Molekül kann das Neutron für  $l = 1$  durch Absorption eines Rotationsquants einen Energiegewinnprozeß (Energiegewinn  $\Delta E = 14,74$  meV) durchlaufen (Ortho-Para-Übergang) und anschließend durch inelastische und elastische Prozesse mit dem Molekül-Gitter wechselwirken. Für  $l = 2$  ( $\Delta E = 0$ ) wird nur ein bezüglich des Molekül-Gitters elastischer und/oder inelastischer Prozeß ablaufen (ein Rotationsübergang findet nicht statt).

In allen vier geschilderten Fällen können bezüglich des Molekül-Gitters elastische Streuprozesse ablaufen. Zur numerischen Auswertung des elastischen Anteils wurde die  $\delta$ -Funktion durch eine um  $\beta = \Delta\beta_l$  symmetrische Kurve mit einem freien Parameter ersetzt. Dieser Parameter wurde so justiert, daß  $\sigma(E) = \int_{\omega_k}^{\omega_k + \epsilon} \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon} d\Omega dE'$  für beide Funktionen ( $\delta$ -Funktion und approximierte Funktion) gleiche Werte und den gleichen Verlauf als Funktion der Energie zeigt.

Zur Berechnung der doppelt-differentiellen Wirkungsquerschnitte  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  für flüssigen Wasserstoff der Temperatur  $T = 16^\circ\text{K}$  und  $20,4^\circ\text{K}$  wurde zur Bestimmung des Streugesetzes  $S_0(\alpha, \beta)$  das sogenannte Sprung-Diffusionsmodell [29] verwendet. Die Bewegungen der Moleküle in der Flüssigkeit werden nach diesem Modell in zwei Anteile zerlegt; in eine sogenannte gebundene Bewegung, die der Bewegung im Festkörper ähnlich ist und um feste Gitterplätze erfolgt und in eine Diffusionsbewegung [15]. Beide Bewegungen werden als unabhängig voneinander angenommen. Weiter wird vorausgesetzt, daß die Selbstkorrelationsfunktion für beide Bewegungen durch eine Gaußfunktion dargestellt werden kann. Dann läßt sich das Streugesetz  $S_0(\alpha, \beta)$  durch Faltung des aus einer Gitterfrequenzverteilungsfunktion  $\rho(\beta)$  gewonnenen

$S_{\text{gitter}}(\alpha, \beta)$  (bei  $T = 16 \text{ }^\circ\text{K}$  bzw.  $T = 20,4 \text{ }^\circ\text{K}$ ) mit dem aus einem Diffusions- $\rho(\beta)$  gewonnenen  $S_{\text{diff}}(\alpha, \beta)$  berechnen. Die intermediäre Streufunktion  $x_{\text{diff}}(\alpha, t)$  für die Diffusionsbewegung lautet [15]:

$$x_{\text{diff}}(\alpha, t) = e^{-\alpha w_{\text{diff}}(t)}$$

mit

$$w_{\text{diff}}(t) = 2 D \frac{M}{h} \left( \sqrt{t^2 + \left(\frac{k_B T}{h} \tau\right)^2} + \frac{1}{4} - \frac{k_B T}{h} \tau \right) \quad \text{II.14 / -}$$

$w_{\text{diff}}(t)$  ist proportional zum mittleren Verschiebungsquadrat der Moleküle infolge von Diffusion. Die Parameter  $D$  und  $\tau$ , Selbstdiffusionskoeffizient und Lebensdauer für einen Gitterschwingungszustand wurden für verschiedene Temperaturen  $T$  von Egelstaff et al. [28] experimentell durch Messung der Abhängigkeit der Halbwertsbreite des quasielastischen Peaks vom Impulsübertrag für den Übergang  $1 \rightarrow 1$  bestimmt.

Tabelle 3 zeigt die Parameter  $D$  und  $\tau$  für flüssigen Wasserstoff der Temperatur  $T = 16 \text{ }^\circ\text{K}$  und  $T = 20,4 \text{ }^\circ\text{K}$ .

Tabelle 3

$T \text{ (}^\circ\text{K)}$	16	20,4
$D \text{ (}\frac{\text{cm}^2}{\text{sec}}\text{)}$	5,6 $10^{-5}$	1,04 $10^{-4}$
$\tau \text{ (sec)}$	2,1 $10^{-12}$	1,65 $10^{-12}$

Das Streugesetz  $S_0(\alpha, \beta)$  für die Flüssigkeit ist nach Ausführung des Faltungsintegrals darstellbar als:

$$S_0(\alpha, \beta) = e^{-2W} \int_{-\infty}^{\infty} S_{\text{diff}}(\alpha, \beta') S_{\text{gitter}}(\alpha, \beta - \beta') d\beta' \quad \text{II.15}$$

Mit II.15 erhält man schließlich für  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  für flüssigen Wasserstoff nach Ausführung des Faltungsintegrals nach II.10:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon} = 4 \frac{k}{k_0} \frac{1}{k_B T} \int_{\lambda} F_{\lambda}(\alpha) e^{-\frac{\beta - \Delta\beta_{\lambda}}{2}} S_0(\alpha, \beta - \Delta\beta_{\lambda}) \quad \text{II.16}$$

Gleichung II.16 ist formal ähnlich zur Beziehung II.13 für festen Wasserstoff. Der bezüglich des Molekülgitters elastische Anteil ist jetzt durch einen quasielastischen Anteil ersetzt, der eine vom Impulsübertrag  $\alpha$  abhängige endliche Halbwertsbreite besitzt.

#### II.4 Numerische Ergebnisse für $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$ und Vergleich mit Meßwerten

Da die Gleichungen II.13 und II.16 formal mit Gleichung II.8 übereinstimmen, konnte das Hauptprogramm zur Berechnung von  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  von Naliboff [28] übernommen werden. Der Programmteil zur Berechnung des Translationsstreugesetzes  $S(\alpha, \beta)$  wurde um eine zusätzliche LEAP-KAPIXE-Phase zur Berechnung eines realistischen  $S(\alpha, \beta)$  erweitert. In der Summe über  $\lambda$  (Gleichung II.8) wurde  $S(\underline{\chi}, \epsilon - \Delta E_{\lambda})$  für  $\lambda = 1, 2$  und  $3$  für Neutronenenergien  $E < 100$  meV über ein  $\rho(\beta)$  berechnet. Für alle Energien  $> 100$  meV und für alle höheren  $\lambda > 3$  wurde  $S(\underline{\chi}, \epsilon)$  mit dem Gasmodell berechnet (Gleichung II.8a). Die vereinfachte Behandlung der höheren Rotationsübergänge ist gerechtfertigt, da im Energiegebiet  $E < 100$  meV die Summenglieder in II.8 für  $\lambda > 3$  keinen Beitrag zu  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  leisten. Die Berechnung von  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  mit dem Gas-

modell für Energien  $E > 100$  meV ist gerechtfertigt, da chemische Bindungseffekte in diesem Energiegebiet keine wesentliche Rolle mehr spielen.

Der doppelt-differentielle Streuquerschnitt wurde jeweils für Ortho- $H_2$  und Para- $H_2$  bei den Temperaturen  $6^\circ K$ ,  $13^\circ K$ ,  $14^\circ K$ ,  $16^\circ K$ ,  $19,8^\circ K$  und  $20,4^\circ K$  berechnet. Den Berechnungen des Gitterstreugesetzes  $S_{\text{gitter}}(\alpha, \beta)$  lag eine von Schott [20] für festen Wasserstoff bei  $T = 4,3^\circ K$  experimentell bestimmte Frequenzverteilungsfunktion  $\rho(\beta)$  zugrunde. Die Form von  $\rho(\beta)$  wurde im Intervall  $4,3^\circ K \leq T \leq 20,4^\circ K$  als temperaturunabhängig angenommen. Das Gewicht von  $\rho(\beta)$  ergibt sich aus der Bedingung, daß die intermediäre Streufunktion  $\chi_{\text{gitter}}(\alpha, t)$  des Gitters für große Energien ( $t \rightarrow 0$ ) in die intermediäre Streufunktion eines freien Protons übergehen muß zu:

$$\int_0^{\infty} \rho(\beta) d\beta = 0,5 \quad \text{II.17}$$

Die Abb.1 zeigt  $\rho(\beta)$  für  $T = 4,3^\circ K$  normiert nach Beziehung II.17.

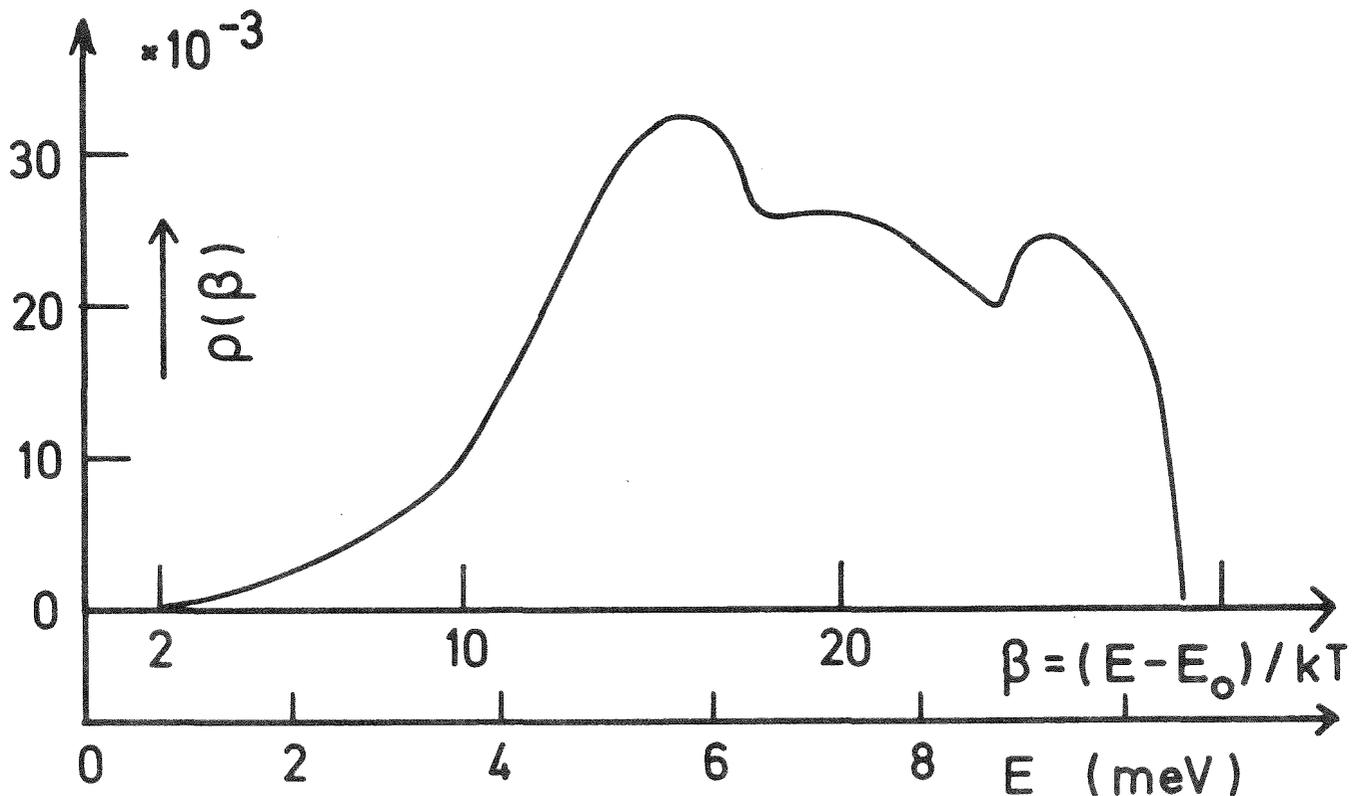


Abb.1 Frequenzspektrum  $\rho(\beta)$  für das Phononenspektrum des  $H_2$ -Gitters bei  $T = 4,3^\circ K$

Der Debye-Waller-Koeffizient  $\gamma = \int_0^{\infty} \coth \frac{\beta}{2} \frac{\rho(\beta)}{\beta} d\beta$  ergibt für das Frequenzspektrum der Gitterschwingungen den Wert 0.062 bei  $\int_0^{\infty} \rho(\beta) d\beta = 1$ . Daraus ergibt sich eine Debye-Temperatur  $\theta_D$  bei  $T = 4,3$  °K von  $\theta_D = 109,5$  °K [51]. Hill und Lounasmaa [52] finden aus dem gemessenen Verlauf der spezifischen Wärme  $C_p$  an  $pH_2$  ein  $\theta_D$  ( $T = 4,3$  °K) von  $113,2$  °K, in guter Übereinstimmung mit dem obigen Wert. Abb.2 zeigt einen Vergleich des von Schott [20] gemessenen doppelt-differentiellen Streuquerschnitts  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  für flüssigen Wasserstoff bei  $T = 19,8$  °K mit nach Gleichung II.16 berechneten Werten. Die Neutroneneinflussenergie  $E_0$  betrug  $21,8$  meV.  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$  wurde für die Streuwinkel  $43,9^\circ$ ,  $55,2^\circ$  und  $66,6^\circ$  gemessen. Der von Schott angegebene  $pH_2$ -Konzentrationswert war auf den von Mc. Reynolds und Whittemore [8] für reinen  $pH_2$  zu  $10,2$  barn angegebenen Wert des totalen Querschnitts bei  $E = 21,8$  meV bezogen. Der tatsächliche Wert von  $\sigma_{tot}$  bei  $E = 21,8$  meV ist 20% geringer, so daß sich als  $pH_2$ -Konzentrationswert für die gezeigten  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$ -Werte ca. 52% ergibt. Die in Abb.2 gezeigten  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$ -Werte sind für diesen Konzentrationswert berechnet.

Die Meßwerte sowie die nach Gleichung II.16 berechneten  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$ -Werte zeigen deutlich einen bei  $E = 7$  meV gelegenen Peak, der dem  $0 \rightarrow 1$  Übergang entspricht. Der gemessene  $0 \rightarrow 1$  Peak ist gegenüber der Rechnung deutlich verbreitert. Dies deutet darauf hin, daß die Rotationsbewegung auf Grund einer möglichen Ortho-Para-Wechselwirkung in der Flüssigkeit behindert ist. Die Meßwerte sind nicht um die apparative Auflösung korrigiert. Dies bewirkt, da das apparative Auflösungsvermögen bei höheren Energien schlechter wird, eine Verschmierung möglicher Strukturen im Bereich der Einfallenergie. Die Messung zeigt insbesondere keinen vom quasielastischen Peak getrennten Peak, der den Gitterschwingungen zuzuschreiben ist. Der quasielastische Peak zeigt aber im Bereich der Gitterschwingungen eine deutlich asymmetrische Form. Die Lage des quasielastischen Peaks wird von der Rechnung gut wiedergegeben.

Zum Vergleich sind auch die mit dem Gasmodell (Gleichung II.8) gerechneten  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$ -Werte in Abb.2 eingezeichnet. Jegliche Struktur der Kurven, insbesondere auch der  $0 \rightarrow 1$  Peak ist jetzt verschwunden. Der quasielastische Peak ist zu kleineren Energien hin verschoben, und er zeigt eine geringere Breite als die gemessene Verteilung. Aus dem ersteren kann gefolgert werden, daß die Molekülmasse des Gasmodells zu klein ist (die dem Molekül übertragene Rückstoßenergie ist zu groß), aus letzterem folgt, daß die Moleküle in der Flüssigkeit eine größere mittlere Energie besitzen als in einem Gas derselben Temperatur.

### II.5 Berechnung der Streuquerschnitte und Vergleich mit experimentellen Daten

Aus den für Ortho- $H_2$  und Para- $H_2$  berechneten Streukernen  $\sigma_0(E_0 \rightarrow E)$  erhält man durch Integration über die Energie den Streuquerschnitt  $\sigma_s(E)$  nach:

$$\sigma_s(E) = \int_0^{\infty} \sigma_0(E \rightarrow E') dE' \quad \text{II.18}$$

Damit ergibt sich eine weitere Kontrolle der Rechenergebnisse. Messungen des Streuquerschnitts  $\sigma_s(E)$  wurden von Seifert [30] an reinem  $pH_2$  bei  $T = 6^\circ K$  und  $14^\circ K$  sowie an normal- $H_2$  ( $nH_2$ ) (75% ortho- und 25% para- $H_2$ ) bei  $T = 13^\circ K$  und  $16^\circ K$  durchgeführt. Da für flüssigen Parawasserstoff der Temperatur  $T = 20,4^\circ K$ , soweit dem Autor bekannt ist, keine verlässlichen Streuquerschnittsdaten existieren (die Messungen von McReynolds und Whittemore [8] sind zwar sorgfältig durchgeführt worden, aber die  $pH_2$ -Konzentration war nicht genau bekannt), konnten zum Test der Rechenmethoden nur die obigen Daten verwendet werden.

Für festen Wasserstoff ( $T < 13 \text{ }^{\circ}\text{K}$ ) wurde das Molekülstreuungsgesetz  $S(\alpha, \beta)$  aus der Phononenfrequenzverteilungsfunktion  $\rho(\beta)$  berechnet. Für flüssigen Wasserstoff ( $T > 13 \text{ }^{\circ}\text{K}$ ) wurde das Streugesetz gemäß Gleichung II.15 berechnet.

Die Abb. 3 und 4 zeigen den Verlauf des gemessenen totalen Streuquerschnitts für  $\text{pH}_2$  und  $\text{n-H}_2$  und zum Vergleich die berechneten Werte. Die Übereinstimmung ist für Energien  $E > 3 \text{ meV}$  in allen Fällen gut. Der Verlauf der gemessenen Streuquerschnitte zeigt für festen und flüssigen  $\text{pH}_2$  für Energien  $E < 3 \text{ meV}$  einen deutlichen Abfall. Er ist auf Braggstreuung zurückzuführen.

Der Cut off liegt im Bereich um  $6 \text{ \AA}$ . Demnach entspricht die Nahordnung der Moleküle in der Flüssigkeit bei  $T = 14 \text{ }^{\circ}\text{K}$  der Nahordnung im Festkörper. (Das  $\text{H}_2$ -Gitter bildet eine hexagonal dichteste Kugelpackung mit den Gitterkonstanten  $a = 3,76$  und  $c = 6,1 \text{ \AA}$ .) Da die Streuquerschnitte in inkohärenter Näherung gerechnet sind, ist dieses Modell nicht geeignet zur Beschreibung von Interferenzeffekten.

Der Abb. 4 kann man entnehmen, daß die Rotationsanregung im  $\text{pH}_2$ -Molekül bei der Schwellenergie für gebundene Moleküle ( $14,74 \text{ meV}$ ) einsetzt. In flüssigem  $\text{pH}_2$  (Abb. 3) setzt die Anregung bereits unterhalb der Schwelle ein. Dies kann nur durch zusätzliche Energiebeiträge aus dem thermischen Energieinhalt der Flüssigkeit erklärt werden. Beide Abbildungen zeigen, daß Neutronen, deren Energie nicht ausreicht, eine Rotationsanregung am  $\text{pH}_2$ -Molekül zu erreichen, rein kohärent gestreut werden.

Die Abbildungen 5a und 5b zeigen gerechnete Teilquerschnitte (Summenterme in der Gleichung II.8) für  $\ell = 1, 2, 3, 4$  für einen 100%  $\text{pH}_2$  bei  $T = 20,4 \text{ }^{\circ}\text{K}$  und für einen 100%  $\text{OH}_2$ -Moderator bei  $T = 20,4 \text{ }^{\circ}\text{K}$ . Der Verlauf der Teilquerschnitte zeigt deutlich das Einsetzen der verschiedenen Rotationsübergänge. Insbesondere erkennt man, daß der  $0 \rightarrow 1$  Teilquer-



$\Sigma_t(E) = \Sigma_s(E) + \Sigma_a(E)$	totaler makroskopischer Wirkungsquerschnitt
$S(\underline{r}, E, \underline{\Omega})$	vorgegebene orts- energie- und winkelabhängige Neutronenquelle
$\Sigma_s(E' \rightarrow E, \underline{\Omega}' \rightarrow \underline{\Omega})$	doppelt-differentieller Streuquerschnitt, abhängig von dem Energieübertrag und der Flugrichtungsänderung des Neutrons bei der Streuung
$E_Q$	maximale, in der Quelle vorkommende Neutronenenergie

Bei einer  $P_0$ -Approximation des Streukerns und des winkelabhängigen Flusses vereinfacht sich Gleichung III.1 zu:

$$\phi(\underline{r}, E) = \int d\underline{r}' T(\underline{r}', \underline{r}, E) \left[ S(\underline{r}', E) + \int_0^{E_Q} dE' \Sigma_0(E' \rightarrow E) \phi(\underline{r}', E') \right] \quad \text{III.1a}$$

$$\Sigma_0(E' \rightarrow E) = \iint d\underline{\Omega} d\underline{\Omega}' \Sigma_0(E' \rightarrow E, \underline{\Omega}' \rightarrow \underline{\Omega})$$

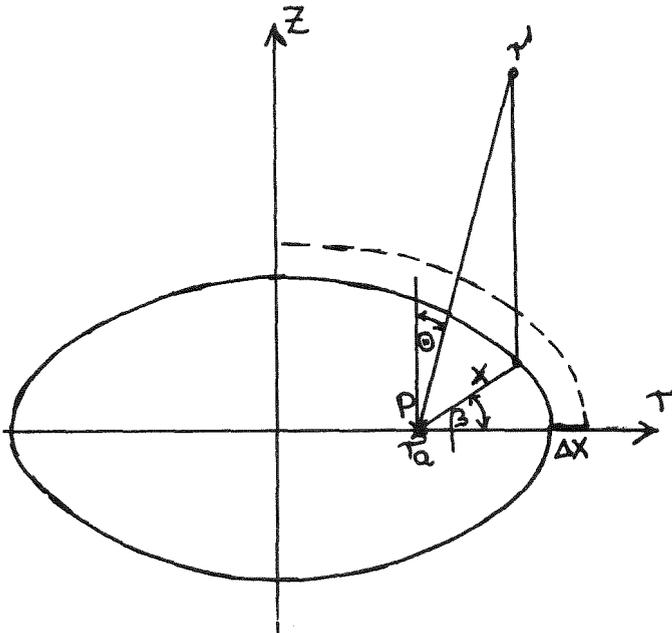
$$T(\underline{r}', \underline{r}, E) = \frac{\exp[-\Sigma_t(E) |\underline{r} - \underline{r}'|]}{4\pi |\underline{r} - \underline{r}'|^2}$$

Der Transportkern  $T(\underline{r}', \underline{r}, E)$  gibt die Wahrscheinlichkeit dafür an, daß ein Neutron der Energie  $E$  ohne Stoß vom Ort  $\underline{r}'$  zum Ort  $\underline{r}$  gelangt.

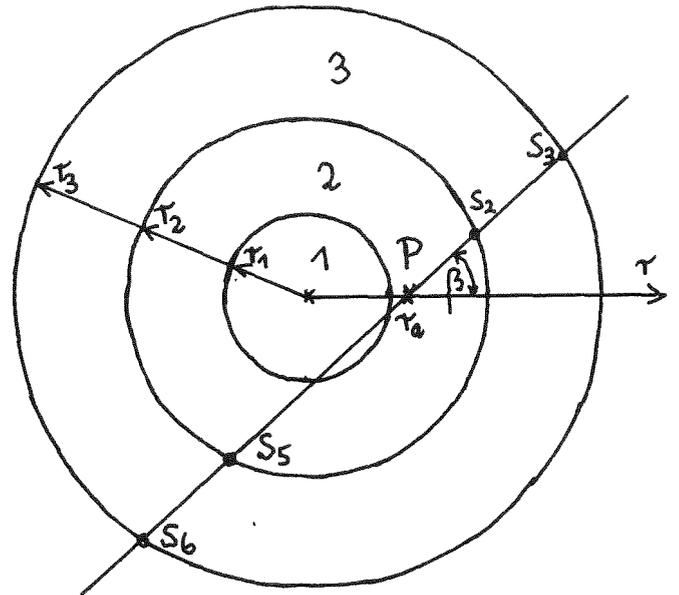
Zur Lösung der Gleichung III.1a in eindimensionaler Zylindergeometrie wird  $T(\underline{r}', \underline{r}, E)$  numerisch berechnet. Dazu wird die Transmissionswahrscheinlichkeit für eine isotrope und in axialer Richtung konstante Einheitslinienquelle nach

$$F(x) = \int_0^{\pi/2} \exp \left[ \frac{-\Sigma_t(E)x}{\sin \theta} \right] d\theta \quad \text{III.1b}$$

berechnet. Mit  $x$ : Projektion der Flugstrecke  $\underline{r}_a \underline{r}'$  in die  $(r\beta)$ -Ebene (siehe nachfolgende Skizze a)



Skizze a



Skizze b

$F(x)$  gibt dann die Wahrscheinlichkeit an, daß ein entlang der Linie  $r = r_0$  emittiertes Neutron den Aufpunkt P bei  $r_a$  ohne Stoß erreicht. Zur numerischen Berechnung von  $T(\underline{r}', \underline{r}, E)$  wird die Ortsvariable diskretisiert. Dann muß die Transmissionswahrscheinlichkeit  $F(x)$  über die Breite  $\Delta x$  des zugehörigen Ortsintervalls integriert werden. Man erhält:

$$F_1(x) = \int_x^{x+\Delta x} F(x) dx = \frac{1}{\Sigma_t(E)} \left\{ \int_0^{\pi/2} \sin \theta e^{-\Sigma_t(E) \frac{x}{\sin \theta}} d\theta - \int_0^{\pi/2} \sin \theta e^{-\Sigma_t(E) \frac{x+\Delta x}{\sin \theta}} d\theta \right\} =$$

$$= \frac{1}{\Sigma_t(E)} \left[ \text{Ki}_2(\Sigma_t(E)x) - \text{Ki}_2(\Sigma_t(E)(x+\Delta x)) \right] \quad \text{III.2}$$

Dabei sind die Bickley und Nayler Funktionen  $\text{Ki}_n(x)$  definiert

als  $\int_0^{\pi/2}$ :

$$Ki_n(x) = \int_0^{\pi/2} \sin^{n-1} \theta \cdot e^{-\frac{x}{\sin \theta}} d\theta$$

Für verschiedene Winkelrichtungen  $\beta$  wird dann die Wegstrecke  $x = x(\beta)$  in den einzelnen Zylinderschalen berechnet, und anschließend wird durch Integration von  $F_1(x(\beta))$  über  $\beta$  der Gesamttransport aus der  $j$ -ten Zylinderschale zum Punkt P in der  $i$ -ten Schale bestimmt (s. Skizze b). In dieser Skizze sind 3 Zylinderschalen gezeichnet, die stets dasselbe homogene Material enthalten. Dann liefert z.B. die in der Skizze mit 3 bezeichnete Zylinderschale bei einer Einheitsquelle in dieser Schale den Beitrag  $T(3,2,E)$  zum Fluß im Aufpunkt P.  $T(3,2,E)$  ist dabei gemäß III.2 gegeben durch:

$$T(3,2,E) = \frac{\Delta V_3}{\Delta V_2} \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} d\beta \frac{1}{\bar{\epsilon}_t(E)} \left\{ Ki_2[\bar{\epsilon}_t(E) S_2(\beta)] - Ki_2[\bar{\epsilon}_t(E) (S_3(\beta))] \right. \\ \left. + Ki_2[\bar{\epsilon}_t(E) S_5(\beta)] - Ki_2[\bar{\epsilon}_t(E) (S_6(\beta))] \right\}$$

mit

$$S_2(\beta) = \sqrt{r_2^2 - r_a^2 \sin^2 \beta} - r_a \cos \beta$$

$$S_3(\beta) = \sqrt{r_3^2 - r_a^2 \sin^2 \beta} - r_a \cos \beta$$

$$S_5(\beta) = S_2(\pi - \beta)$$

$$S_6(\beta) = S_3(\pi - \beta)$$

$$\Delta V_2 = \text{Volumen der Zylinderschale 2}$$

$$\Delta V_3 = \text{Volumen der Zylinderschale 3}$$

Wenn der Quellterm  $S(r,E)$  durch eine externe Neutronenquelle, die Neutronen im MeV-Bereich erzeugt, gegeben ist, braucht zur Berechnung thermischer Spektren  $S(r,E)$  nicht explizit berücksichtigt zu werden. Das Vorhandensein der externen Quelle wird in der Bremsquelle manifestiert. Dazu wird der Ausdruck  $\int_0^{E_0} \Sigma_0(E' \rightarrow E) \phi(r,E') dE'$  durch Aufspaltung des Integrals als Summe zweier Terme dargestellt. Die Aufspaltung wird bei einer Energie  $E_g$  durchgeführt, oberhalb der, der Einfluß der chemischen Bindung und die thermische Bewegung der Moderatorkerne vernachlässigt werden können, d.h. für  $E > E_g$  befindet man sich im Bremsgebiet, in dem für wasserstoffhaltige Moderatoren Neutronen durch elastische Stöße abgebremst werden. Das Integral  $Q(r,E) = \int_{E_g}^{E_0} \Sigma_0(E' \rightarrow E) \phi(r,E') dE'$  kann dann analytisch berechnet werden. Gleichung III.2 lautet dann:

$$\phi(r,E) = \int dr' T(\underline{r}', \underline{r}, E) \overline{Q}(r', E) + \int_0^{E_g} dE' \Sigma_0(E' \rightarrow E) \phi(r', E') \quad \text{III.3}$$

Das Transportprogramm THERMOS  $\overline{[31]}$  löst Gleichung III.3 numerisch für eindimensionale Probleme in ebener und zylindrischer Geometrie. Durch eine einfache Transmissionskorrektur kann man aus dem mit THERMOS berechneten isotropen Fluß  $\phi(r,E)$  einen gerichteten Fluß  $F(r,E,\mu)$  erhalten. Für die Winkelrichtung  $\mu = 1$  erhält man am Rand ( $r=R$ ) des Moderators (senkrechttes Ausflußspektrum):

$$F(R,E,\mu=1) = \int_0^R dr' \exp[-\Sigma_t(E) |R-r'|] \int_0^{E_g} dE' \Sigma_0(E' \rightarrow E) \phi(E', r') \quad \text{III.4}$$

In Gleichung III.4 ist die isotrope Stoßquelle am Ort  $r'$ :

$$P(r', E) = \int_0^{E_g} dE' \Sigma_0(E' \rightarrow E) \phi(E', r')$$

mit einem Faktor multipliziert, der die Wahrscheinlichkeit für die Transmission eines Neutrons der Energie E vom Ort  $r'$  zum betrachteten Aufpunkt R angibt. In  $F(R, E, l)$  werden die Neutronengruppen, deren totaler Wirkungsquerschnitt klein ist, mit einem größeren Gewicht versehen, d.h. sie tragen stärker zum Aufluß bei.

### III.2 Die Berechnung asymptotischer Ausflußspektren

Ausgangspunkt zur Berechnung asymptotischer Ausflußspektren ist die zeit- orts- energie- und winkelabhängige Bilanzgleichung. Sie lautet:

$$\frac{1}{v} \frac{\partial F_0(\underline{r}, E, \underline{\Omega}, t)}{\partial t} + \underline{\Omega} \text{ grad } F_0(\underline{r}, E, \underline{\Omega}, t) + \Sigma_t(E) F_0(\underline{r}, E, \underline{\Omega}, t) =$$

III.5

$$\int_0^\infty dE' \int_{4\pi} d\underline{\Omega}' \Sigma_s(E' \rightarrow E, \underline{\Omega}' \rightarrow \underline{\Omega}) F_0(\underline{r}, E', \underline{\Omega}', t) + S(\underline{r}, E, \underline{\Omega}, t)$$

Die Existenz eines asymptotischen Zustandes bedeutet, daß sich im Moderator hinreichend lange Zeit nach dem Einschub der Quellneutronen eine Neutronenverteilung einstellt, deren Form sich zeitlich nicht mehr ändert. Dann kann  $F_0(\underline{r}, E, \underline{\Omega}, t)$  geschrieben werden:

$$F_0(\underline{r}, E, \underline{\Omega}, t) = F(\underline{r}, E, \underline{\Omega}) e^{-\alpha t}$$

III.6

mit  $\alpha = \alpha_0 + D_0 B^2 - CB^4 + \dots$  höhere Glieder in  $B^2$

III.6 wird in III.5 eingesetzt und man erhält:

$$\underline{\Omega} \text{ grad } F(\underline{r}, E, \underline{\Omega}) + (\Sigma_t(E) - \frac{\alpha}{v}) F(\underline{r}, E, \underline{\Omega}) =$$

$$\int_{4\pi} d\Omega' \int_0^\infty dE' \Sigma_s(E' \rightarrow E, \underline{\Omega}' \rightarrow \underline{\Omega}) F(\underline{r}, E', \underline{\Omega}') + S(\underline{r}, E, \underline{\Omega}, t)$$

III.7

Gleichung III.7 führt nach einer  $P_0$ -Approximation des Streukerns und des winkelabhängigen Flusses auf eine zu Gleichung III.3 identische Integralgleichung, wobei lediglich  $\Sigma_t(E)$  zu ersetzen ist durch:

$$\Sigma_t(E) - \frac{\alpha}{v} \tag{III.8}$$

Für einen  $\frac{1}{v}$ -Absorber gilt:  $\alpha_0 = \Sigma_{a0} v_0$ . Damit heben sich in III.8 die Absorptionskomponenten auf. Für einen großen wasserstoffhaltigen Moderator ( $B^2 \ll 1$ ) gilt weiterhin:

$$\Sigma_s(E) \gg \frac{D_0 B^2 - C B^4 + \dots}{v}$$

so daß schließlich  $\Sigma_t(E) - \frac{\alpha}{v}$  darstellbar ist als:

$$\Sigma_t(E) - \frac{\alpha}{v} \approx \Sigma_s(E)$$

Die Gleichung III.7 wird dann identisch mit der Gleichung für das Milne-Problem [32]. Da Gleichung III.7 auf eine zu Gleichung III.3 identische Integralgleichung führt und aus  $\phi(r, E)$  nach Gleichung III.4 ein gerichtetes Ausflussspektrum berechnet werden kann, kann die Berechnung der asymptotischen Ausflussspektren ebenfalls mit dem THERMOS-

Programm erfolgen. Dazu wird die Quelle  $Q(r,E)$  in Gleichung III.3 Null gesetzt und die verbleibende Integralgleichung iterativ mit einer Maxwellverteilung als Ausgangsverteilung für  $\phi(r,E)$  berechnet.  $E_g$  wird so gewählt, daß Aufwärtsstreuungsprozesse für  $E \gg E_g$  vernachlässigbar klein sind.

### III.3 Die Berechnung von zeitabhängigen Spektren

Zur Bestätigung der experimentellen Aussage über die Existenz eines asymptotischen Zustandes in einem OP-H<sub>2</sub>-Moderator wurde die zeitabhängige Diffusionsgleichung:

III.9

$$\frac{1}{v} \frac{\partial \phi(E,t)}{\partial t} = -[\Sigma_a(E) + \Sigma_s(E) + D(E)B^2(E)]\phi(E,t) + \int_0^{E_Q} \Sigma_o(E' \rightarrow E) \phi(E',t) dE'$$

nach der Methode der infinitesimalen Zeitschritte numerisch gelöst [16, 32, 33].

In III.9 bedeuten:

D(E): Diffusionskonstante  $D(E) = \frac{1}{3[\Sigma_a(E) + \Sigma_s(E)(1-\bar{\mu})]}$

$B^2(E)$ : geometrische Krümmung,  $\phi(E,t)$ : energie- und zeitabhängiger Fluß

Der Term  $\int_0^{E_Q} \Sigma_o(E' \rightarrow E) \phi(E',t) dE'$  wird wieder durch Aufspaltung des Integrals als Summe zweier Terme dargestellt, wobei die

Aufspaltungsenergie  $E_g$  so gewählt wird, daß für  $E > E_g$  die Neutronen durch elastische Stöße an freien ruhenden Kernen abgebremst werden. Dann kann für ein unendliches Medium (Vernachlässigung des Ausflusses) ohne Absorption die Flußverteilung für  $E > E_g$  analytisch bestimmt werden [3].  
Man erhält:

$$\phi(E, t) = \text{const.} \frac{(\Sigma_0 v t)^2}{v} e^{-\Sigma_0 v t} \quad \text{III.10}$$

wobei  $\Sigma_0$  der energieunabhängige Streuquerschnitt im epithermischen Bereich ist.

Zur Berechnung des Integrals

$$\int_{E_g}^{E_0} \Sigma_0(E' \rightarrow E) \phi(E', t) dE'$$

muß noch  $\Sigma_0(E' \rightarrow E)$  bekannt sein.

Unter der Annahme, die Streuung der Neutronen erfolge an einem idealen Wasserstoffgas mit der Temperatur  $T_0$  des Moderators ist  $\Sigma_0(E' \rightarrow E)$  gegeben durch [5]

$$\Sigma_0(E' \rightarrow E) = \frac{\Sigma_0}{E'} \operatorname{erf} \sqrt{\frac{E}{kT_0}} \quad \text{III.11}$$

Mit III.10 und III.11 kann der von den epithermischen Neutronen durch Abwärtsstreuung geleistete Beitrag  $S(E, t)$  zum thermischen Neutronenfluß berechnet werden. Man erhält:

$$S(E, t) = \int_{E_g}^{E_0 \approx \infty} \Sigma_0(E' \rightarrow E) \phi(E', t) dE' = \text{const} \operatorname{erf} \sqrt{\frac{E}{kT_0}} t e^{-\Sigma_0 v_g t} \quad \text{III.12}$$

wobei  $v_g$  die der Grenzenergie  $E_g$  entsprechende Geschwindigkeit der Neutronen ist. Die Bremsphase ist bei wasserstoffhaltigen Moderatoren auf ein enges Zeitintervall von wenigen Mikrosekunden nach dem Einschub der Quellneutronen beschränkt.

Da andererseits die Neutronenverteilung erst lange Zeiten ( $>100 \mu\text{s}$ ) nach dem Quellneutroneneinschuß berechnet werden soll, kann die Zeitabhängigkeit von  $S(E,t)$  durch eine  $\delta$ -Funktion bei  $\bar{t}$  dargestellt werden.

$\bar{t}$  ist dabei definiert als:

$$\bar{t} = \frac{\int_0^{\infty} t S(E,t) dt}{\int_0^{\infty} S(E,t) dt} = \frac{2}{\Sigma_0 v_g} \quad \text{III.13}$$

Damit erhält Gleichung III.9 die Form:

$$\frac{1}{v} \frac{\partial \phi(E,t)}{\partial t} = -[\Sigma_t(E) + D(E) B^2(E)] \phi(E,t) + \int_0^{E_g} \Sigma_0(E' \rightarrow E) \phi(E',t) dE' + \quad \text{III.14}$$

$$\text{erf} \sqrt{\frac{E}{kT_0}} \delta(t - \bar{t})$$

Bei bekannter Ausgangsverteilung  $\phi(E, \bar{t}) = \text{const.} \cdot v \text{erf} \sqrt{\frac{E}{kT_0}}$  ist die Lösung von Gleichung III.14 für Zeiten  $t > \bar{t}$  zu bestimmen. Formal kann die quellfreie Diffusionsgleichung geschrieben werden:

$$\frac{\partial \phi(E,t)}{\partial t} = A \phi(E,t) \quad \text{III.15}$$

$$\text{mit } A \phi(E,t) = -v[\Sigma_s(E) + \Sigma_a(E) + D(E) B^2(E)] \phi(E,t) + v \int_0^{\infty} \Sigma_0(E' \rightarrow E) \phi(E',t) dE'$$

A: Integraloperator

Die Lösung von Gleichung III.15, zur Zeit  $\Delta t$  lautet:  $\overline{[33,34]}$

$$\phi(E, \Delta t) = e^{A \Delta t} \phi(E, 0) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(A \Delta t)^n}{n!} \phi(E, 0) \quad \text{III.16}$$

Zur numerischen Berechnung von  $\phi(E, \Delta t)$  wird die Energievariable diskretisiert; der Operator A kann dann als Matrix dargestellt werden. Die Reihenentwicklung in Gleichung III.16 wird nach dem Glied  $\frac{(A\Delta t)^8}{8!} \phi(E, 0)$  abgebrochen. Für eine ausführlich Diskussion zu Fragen der Konvergenz der Reihenentwicklung und des Fehlers bei Abbruch der Reihe siehe [16].

$\phi(E, \Delta t)$  kann also geschrieben werden:

$$\phi(E, \Delta t) = \sum_{n=0}^8 \frac{(A\Delta t)^n}{n!} \phi(E, 0) = B(\Delta t) \phi(E, 0) \quad \text{III.17}$$

Durch fortgesetzte Anwendung der Beziehung III.17 kann das Spektrum zu beliebigen Zeiten  $l\Delta t$  berechnet werden. Man erhält:

$$\phi(E, l\Delta t) = B(\Delta t) \phi(E, (l-1)\Delta t) = B^l(\Delta t) \phi(E, 0) \quad \text{III.18}$$

$\phi(E, 0)$  ist dabei gegeben durch:

$$\phi(E, 0) = \text{const.} \cdot v \cdot \text{erf} \sqrt{\frac{E}{kT_0}} \quad \text{III.19}$$

Zur Berechnung von  $\phi(E, l\Delta t)$  nach Gleichung III.18 wurde das von Reichardt für die IBM 7074 geschriebene Programm SPIZI [16] verwendet.

III.4 Die Berechnung von Zeitmomenten

Zeitmomente sind definiert als 
$$\overline{t^n(E)} = \frac{\int_0^\infty t^n \phi(E,t) dt}{\int_0^\infty \phi(E,t) dt} \quad \text{III.20}$$

Sie können bei bekanntem zeitabhängigem Fluß berechnet werden. Im Prinzip könnte der zeitabhängige Fluß mit der in Kapitel III.3 beschriebenen Methode der infinitesimalen Zeitschritte in Diffusionsnäherung berechnet werden. Die Gültigkeit der zeitabhängigen Diffusionstheorie bedeutet aber, daß die Zeit zwischen zwei aufeinanderfolgenden Wechselwirkungsprozessen vernachlässigbar klein ist und damit, daß der Neutronentransport von einem Ort  $\underline{r}'$  zum Ort  $\underline{r}$  ohne Zeitverschiebung abläuft. Diese Bedingung ist für Wasserstoff mit einem hohen Paragehalt nicht erfüllt. Die Transportweglänge ist hier mehrere cm groß und entsprechend groß werden die Stoßzeiten. Die Zeitmomente sind damit nicht durch Thermalisierungseffekte, sondern durch die Flugzeiten der Neutronen im Moderator gegeben. In Beziehung III.20 ist demnach als weitere Variable der Ort  $\underline{r}$  einzuführen.

Eine Lösung der orts- energie- und zeitabhängigen Transportgleichung ist ein sehr schwieriges Problem. Dagegen können Integrale der Form  $\int_0^\infty t^n \phi(E, \underline{r}, t) dt$  berechnet werden. Dazu wird die Integralgleichung für  $\phi(\underline{r}, E, t)$  durch Laplacetransformation in eine Integralgleichung für  $L(\underline{r}, E, S)$  transformiert [35]. Die Integralgleichung für den isotropen Fluß  $\phi(\underline{r}, E, t)$  lautet:

$$\phi(\underline{r}, E, t) = \int d\underline{r}' \frac{\exp[-\Sigma_t(E)|\underline{r}-\underline{r}'|]}{4\pi|\underline{r}-\underline{r}'|^2} \int_0^{E_0} dE' \Sigma_0(E' \rightarrow E) \phi(\underline{r}', E', t - \frac{|\underline{r}-\underline{r}'|}{v})$$

Zum Fluß  $\phi$  zur Zeit  $t$ , am Ort  $\underline{r}$  und der Energie  $\Delta E$  um  $E$  tragen alle Neutronen der Energie  $E$  im gesamten Moderatorvolumen bei. Dabei sind die Beiträge von verschiedenen Aufpunkten  $\underline{r}'$  das Produkt aus der Zahl der in  $d\underline{r}'$  um  $\underline{r}'$  zur Zeit  $t - \frac{|\underline{r}-\underline{r}'|}{v}$  erzeugten Neutronen der Energie  $E$ , multipliziert mit der Wahrscheinlichkeit, daß diese Neutronen nach der Flugzeit  $\frac{|\underline{r}-\underline{r}'|}{v}$  zur Zeit  $t$  den Ort  $\underline{r}$  erreichen.

Durch Laplace-Transformation der Gleichung III.21 erhält man:

$$L(\underline{r}, E, s) = \iint T_1(\underline{r}, \underline{r}') d\underline{r}' dE' \Sigma_0(E' \rightarrow E) L(\underline{r}', E', s) e^{-s \frac{|\underline{r}-\underline{r}'|}{v}} \quad \text{III.22}$$

$$\text{mit } T_1(\underline{r}, \underline{r}', E) = \frac{\exp[-\Sigma_t(E) |\underline{r}-\underline{r}'|]}{4\pi |\underline{r}'-\underline{r}|^2}$$

$$\text{und } L(\underline{r}, E, s) = \int_0^{\infty} \phi(\underline{r}, E, t) e^{-st} dt$$

Eine Taylorentwicklung von Gleichung III.22 um  $s = 0$  und Koeffizientenvergleich der rechten und linken Seite liefert:

$$L(\underline{r}, E, s=0) = \int_0^{\infty} \phi(\underline{r}, E, t) dt = \phi_0(\underline{r}, E)$$

$$\left. \frac{\partial L}{\partial s} \right|_{s=0} = - \int_0^{\infty} t \phi(\underline{r}, E, t) dt = -\phi_1(\underline{r}, E)$$

III.23

$$\left. \frac{\partial^2 L}{\partial s^2} \right|_{s=0} = \int_0^{\infty} t^2 \phi(\underline{r}, E, t) dt = \phi_2(\underline{r}, E)$$

Mit III.23 erhält man ein gekoppeltes Integralgleichungssystem für die  $\phi_n(\underline{r}, E)$ , welches in Operatoren-Schreibweise folgende Form annimmt:

$$\begin{aligned}\phi_0 &= T_1 \overline{P\phi_0 + S} \\ \phi_1 &= T_1 \overline{P\phi_1 - \frac{\langle |\underline{r}-\underline{r}'| \rangle}{v} (P\phi_0 + S)} \\ \phi_2 &= T_1 \overline{P\phi_2 - 2\frac{\langle |\underline{r}-\underline{r}'| \rangle}{v} P\phi_1 + \left(\frac{\langle |\underline{r}-\underline{r}'| \rangle}{v}\right)^2 (P\phi_0 + S)} \quad \text{III.24}\end{aligned}$$

Mit

$$T_1 = T_1(\underline{r}, \underline{r}', E) = \int_{\Delta V'} e^{-\Sigma_t(E) |\underline{r}-\underline{r}'|} dV' \quad \text{Transportoperator}$$

$\Delta V'$  bezeichnet dabei den durch die Diskretisierung der Ortsvariablen erzeugten, zum Punkt  $\underline{r}'$  gehörenden Ortsbereich

$$P = \Sigma_0(E' \rightarrow E) \quad \text{Streuoperator}$$

$$S = S(\underline{r}, E) = \int_{E_Q}^{E_0} \Sigma_0(E' \rightarrow E) \phi(\underline{r}, E') dE' \quad \text{Bremsquelle}$$

$$\langle |\underline{r}-\underline{r}'| \rangle = \int_{\Delta V'} R e^{-\Sigma_t(E) R} dV' / T_1(\underline{r}', \underline{r}, E) = \text{mittlerer Weg, den ein Neutron ohne Stoß zurücklegt}$$

$$R = |\underline{r}-\underline{r}'|$$

Eine richtige Berücksichtigung der Flugzeiteffekte im Moderator ist nur durch eine Lösung des gekoppelten Integralgleichungssystems III.24 in zweidimensionaler Geometrie möglich. Dann

kann bei Beschränkung auf Zylindergeometrie die Zeitverschiebung

$$\Delta t = \frac{\langle |\underline{r} - \underline{r}'| \rangle}{v}$$

der Neutronen der Energie  $E$ , die von dem zu  $\underline{r}'$  gehörenden Ortsbereich zum betrachteten Ortsbereich bei  $\underline{r}$  gelangen, richtig bestimmt werden.

Formal lassen sich die Maßnahmen zur Erweiterung der Gleichungen III.24 auf zwei Dimensionen sofort angeben. Dazu hat in Gleichung III.1b lediglich die  $\theta$ -Integration zu entfallen. Dann kann für jeden Ortsbereich außerhalb der  $(r\beta)$ -Ebene der Beitrag zum Fluß bei  $\underline{r}$  zweidimensional behandelt werden.

Eckert löste das Gleichungssystem III.24 in  $(rz)$ -Geometrie durch Erweiterung des THERMOS-Programms bei völliger Neuformulierung der Berechnung des Transportkerns  $T_1(\underline{r}, \underline{r}', E)$ .

Das Iterationsverfahren zur Bestimmung der  $\phi_n(\underline{r}, E)$  wird unter anderem durch eine Renomierungsmethode erheblich beschleunigt [31, 36]. Dazu wird nach jedem Iterationsschritt die gewonnene verbesserte Lösung durch eine Bilanzbetrachtung normiert. Die Bilanzgleichung ergibt sich aus der Forderung, daß die Zahl der Quellneutronen im System gleich sein muß der Zahl der absorbierten und durch Leckage verloren gegangenen Neutronen.

Zur Lösung des gekoppelten Integralgleichungssystems III.24 wird zunächst die Integralgleichung für  $\phi_0(\underline{r}, E)$  iterativ gelöst. Daraus wird durch Multiplikation mit dem Streuoperator  $P$  und Addition der Bremsquelle  $S$  der Quellterm  $P\phi_0 + S$  für die Integralgleichung zur Bestimmung von  $\phi_1(\underline{r}, E)$  gewonnen. Anschließend wird die Gleichung für  $\phi_1(\underline{r}, E)$  iterativ gelöst. Dieselbe Prozedur wird auch zur Berechnung von  $\phi_2(\underline{r}, E)$  angewandt. Damit können nach Gleichung III.20 die Zeitmomente  $t(E, \underline{r})$  und  $t^2(E, \underline{r})$  berechnet werden und daraus schließlich nach Gleichung I.2 die Varianz  $\tau(E, \underline{r})$ .

## IV. Die Meßmethode

### IV.1 Wahl der Meßmethode

Bei einer Kenntnis des zeit- und energieabhängigen Neutronenflusses  $\phi(E,t)$  sind auch das stationäre Spektrum  $\phi(E) = \int_0^{\infty} \phi(E,t) dt$  und das asymptotische Spektrum  $\phi_{as}(E,t)$ , das sich lange Zeit nach Einschub der Quellneutronen in dem Moderator einstellt, bekannt. Außerdem können die Zeitmomente

$$\overline{t^n}(E) = \frac{\int_0^{\infty} t^n \phi(E,t) dt}{\int_0^{\infty} \phi(E,t) dt}$$

berechnet werden. Zur Messung von  $\phi(E,t)$  gibt es zwei Methoden:

- 1) Eine direkte Methode, welche eine unmittelbare Bestimmung von  $\phi(E,t)$  erlaubt [9,10]. Durch Verwendung eines Einkristalls können einzelne Energiegruppen eines in der Energie kontinuierlichen Neutronenstrahls durch Bragg-Reflexion in bestimmten Raumrichtungen gesammelt werden. Diese Methode hat den Nachteil, daß nur wenige Energiegruppen beobachtet werden können. So haben Fluharty et al. [9] die Zeitabhängigkeit von 7 Energiegruppen durch Bragg-reflexion an einem Beryllium-Kristall gemessen. Die Energiegruppen hatten die Energien: 12,7 meV; 50,9 meV; 79,6 meV; 114,7 meV; 203,8 meV; 318,5 meV; 458,6 meV. Untersucht wurden die Moderatoren Wasser und Polyäthylen bei  $T = 293^{\circ}K$  und  $T = 77^{\circ}K$  sowie Eis und Ammoniak bei  $T = 77^{\circ}K$ . Eine Erweiterung des Meßbereichs zu Energien kleiner als 10 meV, wie sie zur Untersuchung von kalten Moderatoren nötig ist, stößt bei dieser Methode auf Intensitätsprobleme.
- 2) Die zweite Methode kann als indirekte Methode bezeichnet werden [16,33]. Im Prinzip kann das zeitabhängige Spektrum auch mit der Flugzeitmethode in Verbindung mit einer ge-

pulsten Quelle und einem Chopper gemessen werden. Dazu müßte allerdings die zeitliche Änderung des Spektrums während der Chopperöffnungszeit klein sein. Dies bedeutet die Verwendung schmaler Chopperschlitze.

Aus Intensitätsgründen ist dies nicht möglich. Deshalb muß mit einer endlichen Chopperöffnungsbreite gearbeitet werden. Dann mißt man leider nicht das zeitabhängige Spektrum  $\phi(E,t)$ , welches bei einer idealen Chopperauflösungsfunktion  $F(t) = \delta(t)$  als Folge einer sehr schmalen Schlitzbreite beschrieben werden kann,

$$\phi(E,t) = \int_0^{\infty} \phi(E',t') \delta(t-t') dt' \quad \text{IV.1}$$

sondern eine Größe  $Z_0(E,t)$ , die durch eine Faltung von  $\phi(E,t)$  mit der Auflösungsfunktion  $F(t-t')$  gegeben ist. Demnach ist eine direkte Messung von  $\phi(E,t)$  nicht mehr möglich. Da aber  $F(t-t')$  durch die Wahl einer geeigneten Form der Chopperöffnung linear in  $t-t'$  gemacht werden kann, ist  $Z_0(E,t)$  als Linearkombination des nullten und des ersten Zeitmomentes darstellbar. Damit ist eine direkte Bestimmung von Zeitmomenten möglich.

Eine Messung von Zeitmomenten nach dieser Methode liefert zusätzliche Informationen, wie z.B. die Energieverteilung von stationären und asymptotischen Neutronenspektren und gibt damit Aufschluß über die Thermalisierungs- und die Transporteigenschaften der untersuchten Moderatoren. Da diese Eigenschaften für einen Flüssigwasserstoff-Moderator bisher nicht untersucht wurden, wurde die indirekte Methode als Meßmethode gewählt, obwohl sie sehr meßzeitintensiv ist und auch einen erheblichen apparativen Aufwand erfordert.

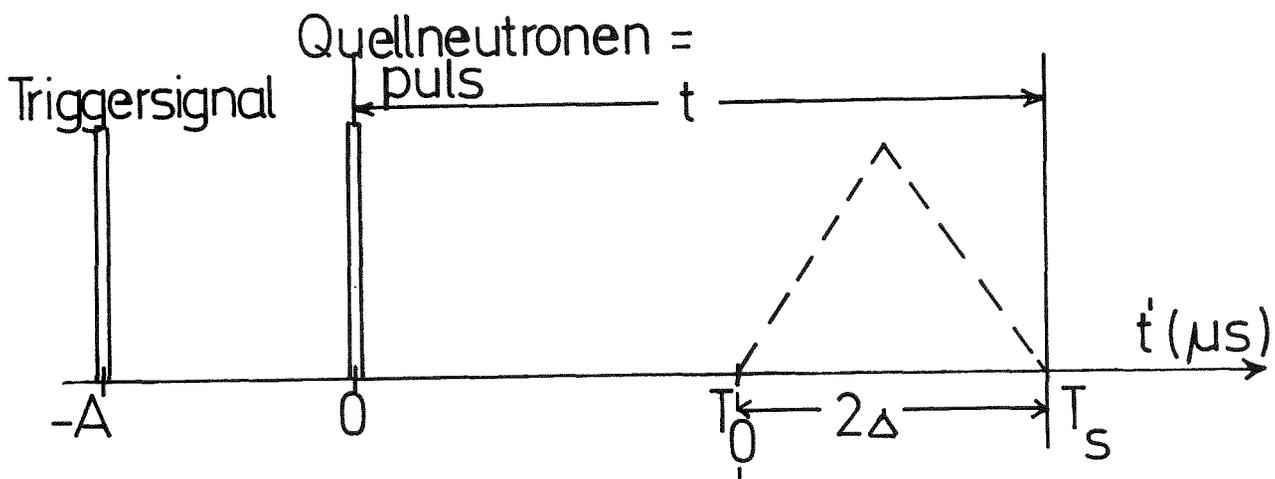
## IV.2 Prinzip der Meßmethode

Abb.6 zeigt schematisch die zur Durchführung der Messungen verwendete Meßanlage. Eine gepulste Quelle erzeugt 14 MeV Neutronen. Ein Bruchteil der schnellen Neutronen wird durch Stöße mit den Moderatorkernen der Temperatur  $T_0$  abgebremst, bis ihre mittlere kinetische Energie im Bereich einiger  $kT_0$  liegt. Der Bremsprozeß geht dann in die Thermalisierungsphase über. Da die Neutronen mit den Bewegungsmoden des Moderators wechselwirken können, wird in dieser Phase die Neutronenmenge von der Dynamik des Moderators geprägt. Außerdem wird das Neutronenschicksal von den Absorptionseigenschaften des Moderators und von seiner Größe bestimmt.

Zwischen Moderator und Flugkanal befindet sich ein Chopper. Er sorgt dafür, daß der Detektor die Moderatoroberfläche nur zu ganz bestimmten Zeiten sieht. Er ermöglicht die Ausblendung einer Momentaufnahme des Zustands der Neutronen im Moderator. Diese Momentaufnahme wird als eine Flugzeitverteilung gemessen, d.h. gemessen wird die Zahl der Neutronen, die nach einer definierten Flugzeit  $T$  während eines kleinen Zeitintervalls  $\Delta t$  den Detektor erreichen.

Das Prinzip der Meßmethode sei an der folgenden Skizze 1 erläutert.

Skizze 1



- $T_0$ : Chopperöffnungszeitpunkt
- $T_S$ : Chopperschließzeitpunkt
- $t$ : maximale Neutronenverweilzeit im Moderator

Das Triggersignal bei  $t' = -A$  dient als Referenzsignal für den Start eines einzelnen Meßzyklus. Der Öffnungszeitpunkt  $T_0$  und der Schließzeitpunkt  $T_s$  des Choppers relativ zum Triggersignal ist bekannt. Im gezeigten Beispiel werden zur Zeit  $t' = 0$  kurzzeitig Quellneutronen in den Moderator injiziert.  $T_0$   $\mu$ s später öffnet der Chopper. Er erlaubt damit die Beobachtung des Neutronenspektrums, welches sich im Zeitintervall von  $T_0$  bis  $T_0 + 2\Delta$  im Moderator einstellt.

Da die Chopperöffnungsbreite endlich groß ist, mißt man nicht das zeitabhängige Spektrum  $\phi(T, t)$  zu einer bestimmten Zeit  $t$  nach dem Quellneutronenimpuls, sondern man mißt eine zeitliche Mittelung über mehrere Momentaufnahmen. Dieser Mittelwert  $Z$  ist als ein Faltungsintegral von  $\phi(T, t)$  mit der Chopperauflösungsfunktion  $F(t)$  darstellbar und kann allgemein geschrieben werden:

$$Z(T, t) = \int_{-\infty}^{\infty} F(t') \phi(T, t') dt' \quad \text{IV.2}$$

Für eine sektorförmige Chopperöffnung ist  $F(t')$  eine lineare Funktion in  $t'$ . Dabei sei die Dicke der Chopperscheibe vernachlässigbar. Die Chopperscheibe rotiert vor einer stationären Blende, deren Öffnung dieselbe Form und Größe hat wie die Chopperöffnung. Dann hat  $F(t')$  die in der Skizze 1 über der Basisbreite  $2\Delta$  eingezeichnete Form.  $F(t')$  ist Null bei  $t' = T_0$ , erreicht ein Maximum bei  $t' = T_0 + \Delta$  (der Chopper hat den Strahl ganz geöffnet) und wird bei  $t' = T_0 + 2\Delta$  wieder Null. Für das in Skizze 1 gezeigte Beispiel hat die maximale Verweilzeit der Neutronen im Moderator den Wert  $t$ . Durch Verschiebung der zeitlichen Lage des Quellneutronenpulses kann  $t$  im Bereich von  $0$   $\mu$ s bis  $(T_s + A)$   $\mu$ s variiert werden. Für jeden Wert  $t$  erhält man eine zugehörige Verteilung  $Z(T, t)$ , die gegeben ist durch:

$$Z(T, t) = \int_{T_0}^{T_0 + \Delta} (t' - T_0) \phi(T, t') dt' + \int_{T_0 + \Delta}^{T_0 + 2\Delta} (T_0 + 2\Delta - t') \phi(T, t') dt' \quad \text{IV.3}$$

Aus IV.3 erhält man durch Substitution von:  $T_0 = t - 2\Delta$ :

$$Z(T, t) = \int_{t-2\Delta}^{t-\Delta} (2\Delta + t - t') \phi(T, t') dt' + \int_{t-\Delta}^t (t - t') \phi(T, t') dt' \quad \text{IV.4}$$

Die endliche Chopperöffnungszeit und die endliche Zeitkanalbreite zur Messung des Flugzeitspektrums bewirken eine Unsicherheit in der gemessenen Flugzeit  $T$ . Die gemessene Flugzeitverteilung  $Z(T, t)$  ist deshalb in Analogie zu IV.2 und IV.4 durch ein doppeltes Faltungsintegral darzustellen:

$$\tilde{Z}(T, t) = \int_{-\infty}^{\infty} F(t - t') dt' \int_{-\infty}^{\infty} R(u) \phi(T - u, t') du \quad \text{IV.5}$$

$R(u)$  berücksichtigt die durch die endliche Chopperöffnungszeit und die endliche Zeitkanalbreite erzeugte Ungenauigkeit in der gemessenen Flugzeit  $T$ . Unter der Annahme, daß die Auflösungskorrektur, welche den Einfluß der Flugzeitunsicherheit auf die Flugzeitverteilung und damit auf die energetische Form des Neutronenspektrums beschreibt, vorgenommen wurde, kann IV.5 geschrieben werden:

$$Z(T, t) = \int_{-\infty}^{\infty} F(t - t') \phi(T - t_1, t') dt' \quad \text{IV.6}$$

Gleichung IV.6 besagt, daß die gemessene Flugzeit  $T$  um  $t_1$  zu korrigieren ist und daß die gemessenen  $Z(T, t)$ -Werte durch korrigierte  $Z(T, t)$ -Werte zu ersetzen sind (siehe Anhang A1). Im folgenden werden mit  $Z(T, t)$  die Meßwerte bezeichnet, die bereits einer Flugzeitauflösungskorrektur unterworfen wurden. Mit Gleichung IV.6 lassen sich zwei Sonderfälle diskutieren.

- 1) Wenn die zeitliche Breite von  $\phi(T, t')$  klein ist gegen die Halbwertsbreite  $\Delta$  der Auflösungsfunktion  $F(t)$ , kann die

t-Abhängigkeit von  $\Phi(T,t)$  durch eine  $\delta$ -Funktion approximiert werden mit:

$$\Phi(T-t_1, t) \sim \overline{\delta(t-t(T))} \Phi^*(T-t_1)$$

$\Phi^*(T-t_1)$  stellt das stationäre Spektrum dar.

Damit folgt aus IV.4:

$$Z(T,t) \sim F(\overline{t-t(T)}) \Phi^*(T-t_1)$$

D.h.  $Z(T,t)$  nimmt bei festem  $T-t_1$  die Dreiecksform der Auflösungsfunktion  $F(t)$  an. Das Maximum von  $Z(T,t)$  liegt bei  $t=\Delta+t(T)$

- 2) Wenn sich  $\Phi(T,t)$  während des Zeitintervalls  $\Delta$  wenig ändert, folgt:

$$Z(T,t) \sim \Phi(T-t_1, t)$$

Eine Messung von  $Z(T,t)$  für große Zeiten  $t$  nach Einschub der Quellneutronen ergibt demnach das asymptotische Spektrum  $\Phi_{as}(T-t_1, t)$ .

## V. Beschreibung der Meßapparatur

### V.1 Die Neutronenquelle

Zur Erzeugung der 14 MeV-Neutronen aus einer  $T(d,\alpha)n$ -Reaktion wurde eine gepulste Quelle vom bewährten Duoplasmatron-Typ benutzt [37]. Deuteriumionenpulse werden auf einer Strecke von wenigen Zentimetern von der auf Erdpotential liegenden Ionenquelle zu dem auf 150 kV Hochspannung liegenden Tritiumtarget beschleunigt. Die Quellneutronenpulsbreite wurde im Bereich von 2  $\mu$ s bis 10  $\mu$ s variiert. Zur Messung von  $Z(T,t)$  für kleine Zeiten  $t$  wurde aus folgenden Gründen eine kleine Quellimpulsbreite, gekoppelt mit einer hohen Pulsfolgefrequenz, gewählt:

- 1) Zu  $Z(T,t)$  tragen nur epithermische Neutronen bei. Die zeitliche Verteilung  $A_0(t)$  dieser Neutronen als Antwort auf einen deltaförmigen Quellimpuls ist nur wenige  $\mu\text{s}$  breit. Demzufolge wird bei einer endlichen Breite  $R(t)$  des Quellimpulses  $A_0(t)$  verschmiert gemäß:

$$A(t) = \int_{-\infty}^{\infty} A_0(t-\tau)R(\tau)d\tau$$

Die zeitliche Breite der Antwort  $A(t)$  ist demnach von der Breite des Quellimpulses abhängig und muß korrigiert werden. Um diese Korrektur klein zu halten, wurde die Quellimpulsbreite zu 2  $\mu\text{s}$  gewählt.

- 2) Der kleinen Flugzeit  $T$  der epithermischen Neutronen zufolge war die Pulsfolgefrequenz durch die Chopperwiederholungsfrequenz von 200 Hz gegeben.

Die Quellimpulsbreite von 10  $\mu\text{s}$  wurde zur Messung von  $Z(T,t)$  für große Zeiten  $t$  gewählt. Jetzt tragen nur thermische Neutronen zu  $Z(T,t)$  bei, da die Intensität der epithermischen Neutronen bereits vernachlässigbar klein ist. Die Breite der zeitlichen Verteilung der thermischen Neutronen ist groß gegen 10  $\mu\text{s}$ , die Quellimpulsbreite kann demnach vernachlässigt werden. Gleichzeitig mußte die Wiederholungsfrequenz wegen der langen Flugzeiten der langsamen Neutronen auf 50 Hz reduziert werden.

Die Neutronenquellstärke betrug, gemittelt über eine Impulsperiode etwa  $10^9$  n/sec bei einem mittleren Targetstrom von 5 mA.

## V.2 Der Moderator

Benachbart zur Neutronenquelle befindet sich wie Abb.6 zeigt, das zylindrische Moderatorgefäß mit einer Höhe von 16 cm und einem Durchmesser von 14,8 cm, bestehend aus einem 1 mm starken Aluminiumrohr mit eingeschweißten massiven Aluminiumböden. Das Moderatorgefäß ist mit flüssigem Wasserstoff gefüllt. Der Gefäßdurchmesser von 14,8 cm wurde gewählt, um eine optimale Ausflußintensität bezüglich des Parawasserstoffs zu erreichen [14].

Das Moderatorgefäß ist Bestandteil eines Kryostaten. Abb.7 zeigt eine Prinzipskizze von ihm mit dem Moderatoreinsatz. Der Kryostat muß folgende Forderungen erfüllen:

- 1) Geringer Abstand zwischen Target und Moderator
- 2) Geringer Abstand und wenig Material zwischen Moderator und Chopper, damit
  - a) die Transmissionsverluste im Neutronenstrahl klein bleiben und
  - b) die noch zu besprechende Korrektur für die Flugzeit der Neutronen zum Chopper klein ist.

Das Moderatorgefäß ist vollständig von einer 1 mm starken Kadmiumhülle umgeben. Die Hülle hat am Neutronenextraktionsort eine Öffnung von 25 mm Durchmesser. Um zu gewährleisten, daß das Moderatorgefäß während eines Meßzyklus mit Wasserstoff gefüllt bleibt, hat es über ein 10 cm langes Rohr mit 2 cm Durchmesser Verbindung mit einem ebenfalls mit Wasserstoff gefüllten Vorratsgefäß. Das Verbindungsrohr trennt das Moderatorgefäß von dem Vorratsgefäß und verhindert damit mögliche Rückstreueffekte zwischen beiden Gefäßen, welche die effektive Moderatorgröße beeinflussen könnten.

Das Moderator- und das Vorratsgefäß werden von mehreren Schichten Superisolationsmaterial (dünne, mit Aluminium beschichtete Kunststoffolien) und von einem auf  $T = 77^{\circ}\text{K}$  ge-

kühlten Kupferschild gegen Wärmezufuhr durch Strahlung geschützt. Die Verdampfungsverluste konnten damit und durch Vakuumisolation auf etwa 0,2 l/h reduziert werden. Dies entspricht einer Blasenkonzentration kleiner als 1% im Moderator.

0,1 mm starke Aluminiumfenster im Kupferschirm und im Kryostatmantelgefäß bewirken, daß der extrahierte Neutronenstrahl den Kryostat nahezu ohne Schwächung durch Absorption oder Streuung verläßt.

### V.3 Das Flugzeitspektrometer

Unter einem Winkel von  $90^\circ$  zur Einschubrichtung der Quellneutronen werden die thermischen Neutronen extrahiert. Durch diese Anordnung wird erreicht, daß die Ortsverteilung der epithermischen Neutronen im Moderator in der Richtung des Flugkanals zur Moderatorachse symmetrisch ist. Durch einen 10 cm langen  $B_4C$ -Eintrittskollimator mit einer sektorförmigen Kadmiumblende wird ein Strahlöffnungswinkel mit einer Divergenz von  $3,3^\circ$  definiert. Zwischen Moderator und Eintrittskollimator kann wahlweise der Chopper einjustiert und an das Flugrohr angeflanscht werden. Der Chopperrotor besteht aus einer Aluminiumscheibe von 352 mm Durchmesser, welche sich um eine Achse parallel zur Flugrichtung der Neutronen dreht. Der prinzipielle Chopperaufbau wurde bereits anderweitig beschrieben [16], so daß hier nur die wichtigsten Daten angeführt werden sollen.

Die Aluminiumscheibe trägt im Abstand  $R = 159,6$  mm vom Zentrum einen 1 mm dicken Kadmiumring als neutronenabsorbierendes Material. An zwei einander diametral gegenüberliegenden Stellen der Scheibe befinden sich 2 sektorförmige Schlitze, von denen der kleinere eine mittlere Breite  $b = 10,7$  mm und

eine Höhe  $h = 11$  mm hat. Zusammen mit der unmittelbar hinter der Chopper-Scheibe liegenden sektorförmigen Kadmium-Eintrittsblende ergibt sich bei einer Drehzahl von  $12700 \frac{U}{\text{Min}}$  eine Chopperhalbwertsbreite  $\Delta$  von  $50,5 \mu\text{s}$ . Die Divergenz des Chopperschlitzes in der Flugkanalrichtung gewährleistet, daß die Transmissionsfunktion bis zu einer unteren Grenzenergie von etwa  $0,2$  meV konstant ist. Der Chopper und das Flugrohr werden gemeinsam evakuiert. Das Choppervakuum wird während der Dauer der Messung ständig überwacht, um ein Heißlaufen des Choppers bei Drücken  $p > 0,5$  Torr zu verhindern.

Die in  $310$  cm Entfernung vom Chopperrotor aufgestellte Detektorbank besteht aus  $8$  parallelgeschalteten  $\text{BF}_3$ -Zählrohren von  $5$  cm Durchmesser und  $41$  cm empfindlicher Länge (Typ 40EB70/50G der Firma 20th Century Electronics). Die empfindliche Fläche der Detektorbank beträgt damit ca.  $40 \times 40$  cm. Zur Verminderung des von der Neutronenquelle erzeugten Untergrunds ist das Flugrohr innen auf seiner ganzen Länge mit einer mindestens  $10$  cm dicken  $\text{B}_2\text{O}_3$ -Abschirmung ausgekleidet. Die am Flugkanalende aufgebaute Detektorbank ist außerdem von einer  $20$  cm starken  $\text{B}_2\text{O}_3$ -Abschirmung umgeben. Die massive Abschirmung ist zur Ausschaltung des Streuneutronenuntergrunds notwendig. Dieser Untergrund würde die Meßergebnisse der intensitätsschwachen Messungen empfindlich stören. Dank der guten Abschirmung konnte der Fremduntergrund eliminiert werden. Der Eigenuntergrund, verursacht durch elektronische Störungen und schnelle Quellneutronen, wird kurze Zeit nach dem Quellneutronenimpuls konstant und beträgt etwa  $2 \frac{\text{Impulse}}{\text{Min}}$ .

#### V.4 Elektronischer Teil der Meßanordnung

Die Abb.8 zeigt schematisiert die wesentlichen Teile der Flugzeitspektrometer-Meßelektronik, dargestellt für den Fall einer Messung mit Chopper. Zwei Photomultiplier mit nachgeschalteten Verstärkern und Pulsformern liefern Rechteckimpulse der Breite  $1 \mu\text{s}$ . In einem der beiden Photomultiplier werden die Impulse durch ein Lichtsignal erzeugt, welches von einem auf der Antriebswelle des Chopperrotors rotierenden Spiegel auf den Photomultiplier geworfen wird (Spiegelphotomultiplier). Bei jeder Chopperdrehung wird ein Impuls erzeugt. Der zweite Photomultiplier ist mit einer zentrierten Blende von  $0,3 \text{ mm}$  Schlitzbreite auf das Choppergehäuse geflanscht (Scheibenphotomultiplier). Die Impulse beider Photomultiplier werden zur Kontrolle des Choppers auf seine Drehzahlkonstanz und zur Überprüfung der Halterung des rotierenden Spiegels benützt. Sie dienen weiter als Referenzsignale zur Triggerung der Meßelektronik. Dazu werden die Impulse des Scheibenphotomultipliers - pro Rotordrehung zwei Impulse - digital verzögert, bis einer der beiden Impulse koinzident wird mit dem Impuls des Spiegelphotomultipliers. Ein nachgeschaltetes Koinzidenzglied liefert in diesem Fall einen Ausgangsimpuls, der als Startimpuls für die gesamte Messung dient. Dieser Startimpuls triggert einen digitalen Verzögerungsgenerator, welcher drei unabhängig verzögerbare Ausgänge hat. Die drei Ausgangssignale dieses Generators können unabhängig voneinander in Schrittweiten von  $0,1 \mu\text{s}$  bis  $10 \text{ ms}$  gegenüber dem Eingangssignal verzögert werden. Sie dienen als Startsignal für die gepulste Neutronenquelle, für ein Monitorgate zur Untergrundmessung und zur Quellintensitätsmessung und als Startsignal für zwei Vielkanalanalysatoren zur Flugzeitmessung und zur parallelen Messung der asymptotischen Lebensdauer.

Der in Abb.8 zwischen dem Koinzidenzglied und dem digitalen Verzögerungsgenerator eingebaute Untersetzter erlaubt eine Reduzierung der Meßzyklusfrequenz, die durch die Chopperdrehzahl

gegeben ist. Dies ist für die Messung von  $Z(T,t)$  für große Zeiten  $t$  notwendig, da die Flugzeit  $T$  der langsamen Neutronen größer war als die Zeit für eine Chopperumdrehung.

Die Signale aus der Detektorbank gelangen nach einer geeigneten Verstärkung und nach Passieren eines Integraldiskriminators in den mit einem Flugzeiteinschub ausgerüsteten 1024-Kanalanalysator vom Typ CN 110 der Firma TMC.

Bei Verwendung von maximal 512 Zeitkanälen entsprach die maximal meßbare Zeit bei einer Zeitkanalbreite von  $32 \mu\text{s}$  und dem Flugweg  $L = 3,1 \text{ m}$  einer kleinsten Energie  $E$  von  $0,19 \text{ meV}$ . Die obere Energiegrenze ergab sich bei Verwendung des Choppers aus der Kadmiumabschneideenergiegrenze zu etwa  $300 \text{ meV}$ .

Die Detektorbanksignale sowie die Signale von zwei im Experimentierraum untergebrachten Monitorzählrohre werden zur Überwachung der Neutronenproduktion des Beschleunigers verwendet. Dazu öffnet ein Monitorgate für ein definiertes Meßzeitintervall nach jedem Neutronenquellimpuls die drei Zähler  $Z_3$ ,  $Z_4$  und  $Z_5$ . Die Öffnungszeit und die Öffnungsdauer des Monitorgates wird so gewählt, daß die Detektorbank während des Meßzyklus nur schnelle Quellneutronen registriert. Diese äußern sich als zeitabhängige Zählraten in den ersten 10 Zeitkanälen des Flugzeitspektrums.

## V.5 Besondere Einrichtungen für den flüssigen Wasserstoff

### V.5.1 Ortho-Para-Wasserstoff-Analyse

Im Rahmen dieser Arbeit wurden  $op\text{-H}_2$ -Mischungen als Moderator-Substanzen untersucht. In diesen Mischungen kommt es auf Grund einer magnetischen Wechselwirkung dicht benachbarter Ortho-Moleküle zu einer natürlichen Ortho-Para-Konversion.

Bei der Temperatur  $T = 20,4^\circ\text{K}$  des flüssigen Wasserstoffs ist reiner  $para\text{-H}_2$  die thermodynamisch wahrscheinlichste Modifikation. Durch den natürlichen Konversionsprozeß wird versucht,

diese günstigste Modifikation zu erreichen. Den gemessenen Verlauf der natürlichen Konversion zeigt Abb.9. Die Konversion ist ein Prozeß zweiter Ordnung und kann phänomenologisch durch folgende Differentialgleichung dargestellt werden:

$$\frac{d x(t)}{dt} = -kx^2(t) \quad \text{V.1}$$

Gleichung V.1 hat die Lösung:  $x(t) = \frac{1}{kt+C_0}$

Mit  $x(t)$  = zeitabhängige Orthokonzentration und  $C_0$  = Orthoanfangskonzentration. Die durchgezogene Kurve in Abb.9 zeigt  $x(t)$  mit  $\frac{1}{C_0} = 27,5\%$  und dem aus der Literatur [38] entnommenen Wert  $k = 0,0113 \text{ h}^{-1}$ .

Durch paramagnetische Substanzen, wie z.B.  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  oder  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  kann die OP-Konversion beschleunigt werden. Die katalytische Wirkung dieser Substanzen beruht auf der Ortsabhängigkeit der Wechselwirkung zwischen den Kernspins des  $\text{H}_2$ -Moleküls und dem durch die paramagnetischen Moleküle in deren Umgebung erzeugten stark inhomogenen Magnetfeld [39].

Da sich die Thermalisierungseigenschaften von Ortho- und Para-Molekülen beträchtlich voneinander unterscheiden, muß die op-Konzentration der Moderatorflüssigkeit bekannt sein, und sie muß für die Dauer einer Messung konstant gehalten werden. Dies erfordert eine kontinuierliche Analyse des Moderatorwasserstoffes. Die bei der Analyse angewandte Methode beruht auf der Messung der unterschiedlichen Wärmeleitfähigkeit von op- $\text{H}_2$  Gasgemischen als Folge des Unterschieds der Rotationsbeiträge zur spezifischen Wärme des Ortho- und Para-Wasserstoffs [40].

Die Analysenapparatur ist durch ein Kupferrohr mit einem eingebauten Magnetventil mit der Kryostatabluftleitung verbunden.

Ihr wesentlicher Teil besteht aus einer Wheatstonemeßbrücke. Ein Zweig der Brücke wird von zwei außen mit flüssigem Stickstoff auf  $77,3^{\circ}\text{K}$  gekühlten Meßzellen mit Wolframwiderstandsdrähten, der andere Zweig von zwei regelbaren Potentiometerwiderständen gebildet. Eine der beiden Meßzellen wird mit dem zu analysierenden Gas, die zweite mit Normalwasserstoffgas (75% ortho, 25% para) bei gleichem Druck (Druckgenauigkeit  $\pm 0,5$  mm  $\text{H}_2\text{O}$ -Säule bei 500 mm Fülldruck) gefüllt.

In [41] wird gezeigt, daß eine maximale Meßempfindlichkeit für eine Meßdrahttemperatur von zirka  $200^{\circ}\text{K}$  erreicht wird. Zum Vergleich: das Verhältnis des Rotationsanteils der spezifischen Wärme von para- zu normal-Wasserstoffgas zeigt bei einer Temperatur von  $150^{\circ}\text{K}$  ein flaches Maximum. Durch Messung der Widerstands-Stromcharakteristik beider Zellenwiderstände wurde der Zellenstrom bestimmt, bei dem die Drahttemperatur ungefähr  $200^{\circ}\text{K}$  betrug. Daraus ergibt sich dann die Größe des Brückeneingangsstroms zu 380 mA.

Durch Herstellung definierter op-Mischungen wurde eine Eichkurve aufgenommen. Als Fixpunkt dient der sich bei  $T = 77,35^{\circ}\text{K}$  mit Aktivkohle als Katalysator einstellende Wert von 51,05% Para-Wasserstoff. Er wurde mit dem aus Neutronenstreuexperimenten bestimmten Energiewert für das 1. Rotationsniveau von  $E_1 = 14,74$  meV [20] nach der Beziehung

$$\beta = \frac{\sum_{J=0,2,4} (2J+1) e^{-J(J+1) \frac{E_1}{2kT}}}{\sum_{J=1,3,5} 3(2J+1) e^{-J(J+1) \frac{E_1}{2kT}}}$$

berechnet [42].

$\beta$  gibt das Konzentrationsverhältnis von para- zu ortho-Wasserstoff an.

Abb.10 zeigt die experimentell bestimmte Eichkurve als least-squarefit-Kurve an die Meßpunkte. Die mittlere Abweichung der

Meßpunkte von der Geraden ergibt sich zu 1,4%, die Meßempfindlichkeit zu 0,122 mA/1% Änderung der op-Zusammensetzung.

### V.5.2 H<sub>2</sub>-Sicherheitsanlage

Um eine größtmögliche Sicherheit beim Umgang mit Wasserstoff zu erreichen, sind folgende Kontrollmaßnahmen nötig:

- 1) Kontinuierliche Überprüfung des Kryostatvakuum
- 2) Überwachung des H<sub>2</sub>-Gehalts der Luft des Experimentierraums

Zu 1): Lufteinbrüche im Kryostat können durch die starke Eisbildung an den kalten Kryostatenteilen gefährlich werden, da möglicherweise Stickstoff-Sauerstoff-Reaktionen ablaufen können, die zu einer Zerstörung des H<sub>2</sub>-Behälters führen könnten [43]. Deshalb werden Lufteinbrüche im Kryostat durch Messung des Kryostatvakuum registriert. Bei einem Druckanstieg im Kryostat über 0,1 Torr laufen die unten angeführten Sicherheitsmaßnahmen an.

Zu 2): Gasförmiger Wasserstoff bildet in Luft bei H<sub>2</sub>-Konzentrationen zwischen 4 und 75,6 Vol% ein zündfähiges Gemisch. Deshalb sind Lecks in den H<sub>2</sub>-Anlagenteilen des Kryostaten gefährlich. Der H<sub>2</sub>-Gehalt der Luft des Experimentierraums wird durch Vergleich der Wärmeleitfähigkeit der zu überwachenden Raumluft und gewöhnlicher atmosphärischer Luft bestimmt. Dabei können Wasserstoffanreicherungen kleiner als 1 Vol% nachgewiesen werden. Bei Erreichen der 1%-Grenze laufen ebenfalls die folgenden Sicherheitsmaßnahmen an. Dies sind:

- a) Die Abschaltung aller nicht explosionsgeschützten elektrischen Anlagenteile, wie Neutronengenerator, Chopper und Vakuumpumpen;

- b) die Abschaltung der gesamten Meßelektronik;
- c) die Notstromversorgung der Magnetventile in den Kryostatabluftleitungen;
- d) eine erhöhte Frischluftzufuhr im Experimentierraum durch drei explosionsgeschützte Ventilatoren (pro Stunde wird die Raumluft 15 mal erneuert);
- e) zusätzlich bei einem Lufteinbruch im Kryostat: Notentleerung des Kryostatwasserstoffs.

## VI. Die Messungen und ihre Auswertung

### VI.1 Die Durchführung der Messungen

Durch Variieren der Zeit  $t$  zwischen 0 und 350  $\mu\text{s}$  wurden zeitabhängige Zählraten  $Z(T, t)$  gemessen. Dabei bedeutet  $t$  das Zeitintervall zwischen dem Quellneutroneneinschuß und dem Schließzeitpunkt des Choppers, d.h.  $t$  gibt die maximal mögliche Verweilzeit eines Neutrons im Moderator an.  $T$  bedeutet die gemessene Flugzeit. Um für jeden Zeitwert  $t$  den Zustand einer annähernd gleichzeitigen Datengewinnung zu erreichen, wurde die Gesamtmeßzeit in Meßintervalle von 5 Stunden unterteilt. Nach Ablauf dieser Zeit wurde ein neuer Wert  $t$  gewählt und wieder ein Teilspektrum gemessen. Die zeitabhängigen Teilmessungen müssen auf die gleiche Quellneutronenintensität normiert werden. Dies ist notwendig zur Bestimmung der Energieverteilung des stationären und des asymptotischen Spektrums.

Zur Untergrundmessung, verursacht durch Epikadmium-Neutronen, raumgestreute Neutronen, sowie Dunkelstrom und Zwischenpulse des Generators, wurde ein Neutroneninjektionszeitpunkt gewählt, bei dem der Chopper die Blende vorher geschlossen hatte.

Eine erfolgreiche Messung setzt eine während des Meßzeitintervalls konstante Auflösungsfunktion  $F(t-t')$  voraus. Dies ist nur möglich, wenn der Chopper mit konstanter Drehzahl läuft. Drehzahlschwankungen bewirken eine zeitliche Verschiebung der Photomultiplierpulse und damit, falls diese Verschiebung größer als  $1 \mu\text{s}$  wird, eine Verletzung der Koinzidenzabfrage. In diesem Fall ist der Meßzyklus unterbrochen. Die Langzeitdrift der Chopperdrehzahl wird im Verlauf einer Messung ständig überwacht. Änderungen werden durch die Einstellung neuer Verzögerungszeiten an beiden Verzögerungsgliedern ausgeglichen.

Der Zeitpunkt der Strahlöffnung bei fester Chopperdrehzahl wird optisch bestimmt. Dazu wird der an dem Chopper angeflanschte Eintrittskollimator mit der sektorförmigen Kadmiublende durch eine zentrierte Schlitzblende mit Photomultiplier ersetzt. Der Zeitpunkt der Strahlöffnung ist durch den Zeitabstand zwischen dem Impuls dieses Photomultipliers und dem des Spiegelphotomultipliers gegeben. Der Öffnungszeitpunkt kann durch eine sorgfältige Zentrierung der Blende auf etwa  $\pm 0.5 \mu\text{s}$  bestimmt werden. Dann ist auch der Zeitpunkt  $T_s$ , zu dem die Blendenöffnung gerade wieder geschlossen ist, bekannt. Durch digitale Verzögerung des vom Spiegelphotomultiplier gelieferten Impulssignals, welches ca.  $700 \mu\text{s}$  vor  $T_s$  liegt (bei  $P = 12600 \frac{U}{\text{Min}}$ ), kann ein Signal erzeugt werden, welches eine bestimmte Zeit  $t'$  vor  $T_s$  liegt. Dieses Signal dient als Triggersignal für die gesamte Meßapparatur.

Zur Durchführung der Messungen mußte die  $o\text{-H}_2$ -Konzentration für die Dauer der Messung konstant gehalten werden. Da sich (siehe Abb.9) das Ortho-Para-Mischungsverhältnis in der Flüssigkeit bei einem hohen Orthoanteil zeitlich zugunsten des Para-Anteils verschiebt, wurde für jede Teilmessung (Dauer 5 Stunden) durch Analyse die mittlere Parakonzentration bestimmt. Durch Mischen von flüssigem Wasserstoff mit verschiedener Parakonzentration im Kryostat konnte der Konzentrationswert konstant gehalten werden.

Aus dem Zeitverlauf der  $Z(T,t)$ -Werte kann das stationäre Spektrum gewonnen werden. Durch Vergleich dieses Spektrums mit einem direkt gemessenen, ist eine Kontrolle der gemessenen  $Z(T,t)$ -Werte möglich. Zur direkten Messung stationärer Spektren wird der Chopper aus dem Flugzeitspektrometer entfernt. Als Startzeitpunkt der Flugzeitmessung dient der in den Moderator injizierte schnelle Neutronenquellimpuls.

Außerdem wurde mit einem kleinen  $\text{BF}_3$ -Zählrohr der zeitliche Zerfall des Neutronenfeldes an der Oberfläche der Moderatoren gemessen. Damit wurde die Lebensdauer des asymptotischen Spektrums für verschiedene  $\text{OP-H}_2$ -Mischungen bestimmt.

## VI.2 Die Auswertung der Meßdaten

Die im Vielkanalanalysator gespeicherten Meßwerte  $\tilde{Z}(T,t)$  müssen mit Korrekturen versehen werden, die die jeweiligen spezifischen Meßverfahren berücksichtigen. Dabei zeigt es sich, daß die Meßdaten zur Bestimmung der Zeitmomente nach Ausführung der Flugzeitauflösungskorrektur direkt ausgewertet werden können.

Die numerischen Methoden dieser Auswertung werden im Kapitel VI.2.2 beschrieben und die zugrunde liegenden Annahmen diskutiert.

### VI.2.1 Korrektur der Meßdaten

Die Abb. 11 und 12 zeigen als Resultat einer jeweils 400-stündigen Meßreihe die gemessenen zeitabhängigen Zählraten  $Z(T,t)$ <sup>\*)</sup> für einige ausgewählte thermische Energiegruppen für zwei  $\text{OP-H}_2$ -Mischungen mit 77% bzw. 98%  $\text{pH}_2$ . Für die beiden Messungen waren die Chopperdrehzahlen und die Schlitzbreiten voneinander verschieden. Für die Messung an dem 77%  $\text{pH}_2$ -Moderator (Mischung 1) betrug die Halbwertsbreite  $\Delta$  der Auflösungsfunktion  $F(t-t')$  50,5  $\mu\text{s}$ . Für die Messung an dem 98%  $\text{pH}_2$  Moderator (Mischung 2)

---

<sup>\*)</sup> Gemäß Gleichung IV.6 wurde bereits die Flugzeitauflösungskorrektur durchgeführt.

war  $\Delta = 43,6 \mu\text{s}$ . Die gezeigten Meßkurven sind untergrundkorrigiert, und die Kurven jeder Abbildung sind auf dieselbe Quellneutronenintensität normiert. Die Punkte geben die Meßwerte wieder. Die durchgezogenen Kurven sind zur besseren Übersicht zeichnerisch an die Meßwerte angepaßt.

Die Chopperscheibe rotiert in einer Entfernung  $d$  ( $d = 1,5 \text{ cm}$ ) von der Moderatorextraktionsfläche. Ein Neutron der Energie  $E$ , das  $t \mu\text{s}$  vor dem Chopperschließzeitpunkt in den Moderator injiziert wurde, befand sich demnach nur  $(t-a) \mu\text{s}$  ( $a = \frac{d}{v}$ ) im Moderator. Zur Bestimmung der Zeitmomente ist dies die einzige Korrektur, die an  $Z(T,t)$  angebracht werden muß. Die in den Abb.11 und 12 gezeigten Meßwerte sind um diesen Effekt nicht korrigiert. Eine Korrektur würde wegen der Linearität der Auflösungsfunktion  $F(t-t')$  eine Parallelverschiebung der  $Z(T,t)$ -Kurven um den Betrag  $a(T) = \frac{d}{v(T)}$  entlang der negativen  $t$ -Achse bedeuten. Dies erklärt teilweise die zeitliche Verschiebung der gezeigten Kurven, die mit abnehmender Energie (entsprechend wachsendem  $a$ ) zu positiven  $t$ -Werten verschoben sind. Ein weiterer, von der Meßapparatur unabhängiger Grund für die zeitliche Verschiebung der  $Z(T,t)$ -Werte ist der langsame Aufbau der niederenergetischen Neutronen im Moderator in Verbindung mit ihrer geringen Intensität.

Da später auch die gemessenen Spektren diskutiert werden, werden die zu ihrer Auswertung notwendigen Korrekturen im folgenden angegeben:

- 1) Umrechnung der gemessenen Flugzeitverteilung  $Z(T,t)$  in eine Energieverteilung  $\Phi(E,t)$  gemäß:  $\Phi(E,t) \sim T^3 Z(T,t)$
- 2) Korrektur der Neutronenverluste längs des Flugweges
- 3) Energieabhängige Ansprechwahrscheinlichkeit der Zählrohrbank
- 4) Zeitauflösungskorrektur
- 5) Für die Bestimmung der asymptotischen Spektren: Korrektur um den endlichen Abstand zwischen Moderator und Chopper

Zu 2): Durch Strukturmaterialien (5 mm Aluminium, 1 mm Kupfer) und Gasreste im Flugrohr wird der Neutronenstrahl durch Absorption und Streuung geschwächt. Der Einfluß der Neutronenstreuung wurde experimentell durch Variieren der Dicke der Transmissionsmaterialien und durch Variieren des Gasdrucks bestimmt. Er erwies sich bei den verwendeten Materialien als so gering, daß er vernachlässigt werden konnte. Die Transmissionsschwächung wurde unter Verwendung der in [44] angegebenen Absorptionsquerschnitte bei der Auswertung berücksichtigt.

Zu 3): Die energieabhängige Detektorempfindlichkeit wurde der Arbeit von Beckurts [45] entnommen und durch Vergleich eines gemessenen mit einem gerechneten Spektrum überprüft. Der Vergleich wurde für einen quaderförmigen Wassermoderator mit den Abmessungen 27,4 x 27,4 x 22,5 durchgeführt. Das Spektrum wurde aus der Moderatormitte extrahiert. Das mit dem Transportprogramm THERMOS berechnete Spektrum war innerhalb der Meßgenauigkeit (< 10%) mit dem gemessenen Spektrum identisch.

Zu 4): a) Auflösungskorrektur bei der Messung stationärer Spektren

Durch die endliche Verweilzeit  $t$  der Neutronen im Moderator ist der Startzeitpunkt zur Messung der stationären Neutronenflugzeitverteilung  $Z(T)$  verschmiert.  $T$  ist die Flugzeit, gemessen vom Zeitpunkt des Einschusses der Quellneutronen an, bis zur Ankunft des Neutrons an der Detektorbank. Zur Zählrate  $Z(T)$  tragen auch Neutronen einer anderen Flugzeit  $T' = T - t$  bei. Die ohne Chopper gemessene Laufzeitverteilung  $Z(T)$  ist demnach als Faltung der bei idealer Auflösung gegebenen Flugzeitverteilung  $Z_0(T)$  (alle Neutronen einer Energie verlassen den Moderator gleichzeitig) und einer Auflösungsfunktion  $R(t)$  darstellbar [46]:

$$Z(T) = \int_{-\infty}^{\infty} Z_0(T-t')R(t')dt' \quad \text{VI.1}$$

$R(t)$  beschreibt dabei die Zeitabhängigkeit der Neutronenemission, die durch den statistischen Charakter der Brems- und Thermalisierungsprozesse eine endliche Breite aufweist. Durch Taylorentwicklung von  $Z_0(T-t')$  um  $T-\bar{t}$  folgt aus Beziehung VI.1 (wenn  $T \gg \bar{t}$ , wobei  $\bar{t}$  das erste Zeitmoment der Funktion  $R(t)$  bedeutet, kann die Taylorentwicklung nach den 3 ersten Gliedern abgebrochen werden):

$$Z_0(T-\bar{t}) = Z(T) \left[ 1 - \frac{1}{2} \frac{Z''(T)}{Z(T)} (\bar{t}^2 - t^2) \right] \quad \text{VI.2}$$

In VI.2 bedeuten:  $\bar{t}^n = \frac{\int_0^\infty t^n R(t) dt}{\int_0^\infty R(t) dt}$ ,  $\tau = \sqrt{\bar{t}^2 - \bar{t}^2} =$  Varianz der

zeitlichen Verteilung  $R(t)$  des Neutronenpulses. Nach Gleichung VI.2 hat eine Korrektur der gemessenen Flugzeit  $T$  um die mittlere Bremszeit der epithermischen Neutronen bzw. um die mittlere Verweilzeit der thermischen Neutronen im Moderator zu erfolgen. Anschließend ist bei bekannter Varianz  $\tau$  die Laufzeitverteilung  $Z_0(T-t)$  nach Gleichung VI.2 zu berechnen.

#### b) Auflösungskorrektur für asymptotische Spektren

Durch die endliche Chopperöffnungszeit ergibt sich eine Verschmierung der gemessenen Flugzeit  $T$  und gleichzeitig wegen der Zeitabhängigkeit der gemessenen Neutronenverteilung eine Zeitmittelung. Wenn das Neutronenfeld einen Zustand erreicht hat, bei dem jede Energiegruppe rein exponentiell mit der energieunabhängigen Zerfallskonstanten  $\alpha$  zerfällt (asymptotischer Zustand), können beide Auflösungskorrekturen ausgeführt werden (siehe Anhang A2). Man erhält:

$$Z_0(T-t_1, t) = Z(T, t) \left[ 1 - \frac{1}{2} \Lambda^2 \frac{\partial^2 Z(T, t)}{\partial T^2} \frac{1}{Z(T, t)} \right] \left( \frac{\alpha \Delta}{1 - e^{-\alpha \Delta}} \right)^2 \quad \text{VI.3}$$

$$\text{Mit } \Delta^2 = \frac{\Delta t_1^2}{3} + \frac{\Delta^2}{6} \quad \begin{array}{l} \Delta t_1 \text{ Zeitkanalbreite} \\ \Delta \text{ Halbwertsbreite der Chopperauflösungs-} \\ \text{funktion } F(t-t') \end{array}$$

$$t_1 = \Delta + \frac{\Delta t_1}{2}$$

Zu 5): Zur Korrektur des Abstands zwischen Moderator und Chopper sind die  $t$ -Werte der  $Z(T,t)$ -Kurven um den Betrag  $a = \frac{d}{v(T)}$  zu verringern. Im asymptotischen Teil der  $Z(T,t)$ -Kurven ist dies gleichbedeutend mit der Multiplikation der  $Z(T,t)$ -Werte mit dem Faktor  $\exp\left[-\alpha \frac{d}{v(T)}\right]$ .

Zur Bestimmung der Spektren aus den Meßdaten wurde ein Programm geschrieben, welches die genannten Korrekturen ausführt.

### VI.2.2 Numerische Auswertung zur Bestimmung der Zeitmomente

Nachdem die Auflösungskorrektur zur Berücksichtigung der Flugzeitunsicherheit ausgeführt ist, besteht die einzige weitere Korrektur der  $Z(T,t)$ -Kurven zur Bestimmung der Zeitmomente in einer Transformation des  $t$ -Meßstabs. Die im folgenden angegebenen Beziehungen zur Auswertung der Meßdaten gehen davon aus, daß diese Transformation erfolgt ist. Damit vereinfachen sich alle weiteren Gleichungen. In dem Auswerteprogramm zur Bestimmung der Zeitmomente wird die Transformation nicht explizit durchgeführt, sondern die Zeitmomente werden um diesen Effekt korrigiert. Wie man auch anschaulich zeigen kann, ist die Parallelverschiebung der  $Z(T,t)$ -Kurven wegen der Linearität der Funktion  $F(t-t')$  gleichbedeutend mit einer Verringerung des ersten Zeitmoments um  $a = \frac{d}{v}$  ( $d$  = Abstand zwischen der Neutronenextraktionsfläche am Moderator und dem Chopper,  $v$  = Geschwindigkeit des Neutrons). Die Varianz einer Funktion ist ein Maß für die Breite dieser Funktion und ist damit unabhängig von Translationsoperationen.

Eine Bestimmung der Zeitmomente  $\overline{t(T)}$  und  $\overline{t^2(T)}$  setzt die Kenntnis der folgenden Größen voraus:

$$\begin{aligned}\phi_0(T) &= \int_0^{\infty} \phi(T,t) dt \\ \phi_1(T) &= \int_0^{\infty} t \phi(T,t) dt \\ \phi_2(T) &= \int_0^{\infty} t^2 \phi(T,t) dt\end{aligned}\quad \text{VI.4}$$

Entsprechend der Definition der Auflösungsfunktion  $F(t-t')$  für die verschiedenen Zeitbereiche  $t$  kann  $Z(T,t)$  durch folgende Ausdrücke dargestellt werden:

$$\begin{aligned}Z(T,t) &= \int_0^t (t-t') \phi(T,t') dt' && t \leq \Delta \\ Z(T,t) &= \int_0^{t-\Delta} (2\Delta-t+t') \phi(T,t') dt' + \int_{t-\Delta}^t (t-t') \phi(T,t') dt' && \Delta \leq t \leq 2\Delta \\ Z(T,t) &= \int_{t-2\Delta}^{t-\Delta} (2\Delta-t+t') \phi(T,t') dt' + \int_{t-\Delta}^t (t-t') \phi(T,t') dt' && t \geq 2\Delta\end{aligned}\quad \text{VI.5}$$

\*\*)

Wenn  $\phi(T,t)$  eine exponentielle  $t$ -Abhängigkeit gemäß:

$$\phi(T,t) = \phi(T) e^{-\alpha(T)t}$$

zeigt, erhält man aus der dritten Gleichung VI.5:

$$Z(T,t) = \left( \frac{1 - e^{-\alpha(T)\Delta}}{\alpha} \right)^2 \phi(T) e^{-\alpha(T)t} \quad \text{VI.6a}$$

---

\*\*\*) Der Faktor  $\frac{1}{\Delta^2}$  wurde weggelassen, da er bei der Bestimmung der Zeitmomente ohne Bedeutung ist.

Damit erhält man aus VI.4:

$$\phi_0(T) = \int_0^A \phi(T,t) dt + B$$

$$\phi_1(T) = \int_0^A t \phi(T,t) dt + B \left( A + \frac{1}{\alpha(T)} \right) \quad \text{VI.6}$$

$$\phi_2(T) = \int_0^A t^2 \phi(T,t) dt + B \left( A^2 + 2 \frac{A}{\alpha(T)} + \frac{2}{\alpha^2(T)} \right)$$

mit  $B = \frac{\alpha(T) Z(T,A)}{(1 - e^{-\alpha(T)A})^2}$

Die Indizierung  $\alpha = \alpha(T)$  soll andeuten, daß jede Energiegruppe mit einem anderen  $\alpha$  zerfallen kann. Wie die Abb. 11 und 12 zeigen, gehen die  $Z(T,t)$ -Kurven für Neutronen mit thermischen Energien nach einer hinreichend langen Zeit  $t = A$  in eine exponentielle  $t$ -Abhängigkeit über, entsprechend der Tatsache eines exponentiellen Zerfalls jeder Energiegruppe. Die zweiten Glieder in den Ausdrücken für die  $\phi_n(T)$  können damit berechnet werden. Es verbleibt noch die Bestimmung der Ausdrücke

$$\int_0^A t^n \phi(T,t) dt \text{ für } n = 0, 1, 2 \dots$$

Setzt man  $A = N\Delta$  und betrachtet  $Z(T, n\Delta)$  für  $n = 1, \dots, N$ , so erhält man aus den Gleichungen VI.5  $N$  Gleichungen, aus denen eine Bestimmungsgleichung für  $\int_0^A \phi(T,t) dt$  und für  $\int_0^A t \phi(T,t) dt$  gewonnen werden kann. Man erhält:

$$\int_0^{N\Delta} \phi(T, t) dt = \frac{1}{\Delta} \sum_{\nu=1}^{N+1} Z(T, \nu\Delta) - \frac{1}{\Delta} \int_{N\Delta}^{(N+1)\Delta} Z(\bar{(N+1)\Delta - t}) \phi(T, t) dt \quad \text{VI.7}$$

$$\int_0^{N\Delta} t \phi(T, t) dt = \sum_{\nu=1}^N \nu Z(T, (\nu+1)\Delta) - N \int_{N\Delta}^{(N+1)\Delta} Z(\bar{(N+1)\Delta - t}) \phi(T, t) dt \quad \text{VI.8}$$

Die zweiten Terme in den Gleichungen VI.7 und VI.8 können exakt berechnet werden, da N so gewählt wurde, daß Z(T, t) und damit nach VI.6a auch  $\phi(T, t)$  eine exponentielle Abhängigkeit zeigen. Für Mischung 1 wurde N = 5 gewählt, entsprechend einer Zeit t = 252,5  $\mu$ s. Für Mischung 2 war N = 6 entsprechend t = 261,6  $\mu$ s. Damit war gewährleistet, daß alle Energiegruppen einen exponentiellen Zerfall aufweisen.

Der Term  $t^2 \phi(T, t) dt$  kann nicht direkt aus den Beziehungen VI.5 gewonnen werden, sondern erst nach einer partiellen Integration. Man erhält schließlich:

$$\int_0^{N\Delta} t^2 \phi(T, t) dt = (N\Delta)^2 \int_0^{N\Delta} \phi(T, t) dt - 2N\Delta \sum_{\nu=0}^{N-1} (\nu+1) Z(T, N\Delta - \nu\Delta) + 2 \sum_{\nu=0}^{N-1} (\nu+1) \int_0^{N\Delta - \nu\Delta} Z(T, t) dt \quad \text{VI.9}$$

Mit der Beziehung  $\int_0^x \phi(T, t) dt = \sum_{\nu=0}^n (\nu+1) \left. \frac{\partial Z(T, t)}{\partial t} \right|_{t=x-\nu\Delta}$  (s. Anhang A3) VI.9a

läßt sich auch die Bestimmung von  $\int_0^{N\Delta} t^2 \phi(T, t) dt$  auf die Auswertung der gemessenen Z(T, t)-Kurven zurückführen.

Zur numerischen Auswertung der Z(T, t)-Kurven nach den Beziehungen VI.7 bis VI.9 müssen für ein festes T die Z(T, t)-Werte und deren Ableitungen  $\frac{\partial Z(T, t)}{\partial t}$  an den Stützstellen t =  $\nu\Delta$  bekannt sein.

Die epithermischen Neutronenenergiegruppen zerfallen sehr rasch, so daß  $Z(T,t)$  im wesentlichen durch  $F(t-t')$  gegeben ist. Abb.13 zeigt die gemessenen, untergrundkorrigierten und quellintensitätsnormierten Meßwerte  $Z(T,t)^*$  für einige epithermische Energiegruppen für den 98%  $pH_2$ -Moderator. Die Halbwertsbreite  $\Delta$  von  $F(t-t')$  beträgt 43,6  $\mu s$ .  $Z(T,t)$  ist durch die erste der Gleichungen VI.5 gegeben. Da  $\phi(T,t)$  klein ist für  $t \gg \Delta$ , kann diese Gleichung auch geschrieben werden:

$$Z(T,t) = t \int_0^{\infty} \phi(T,t') dt' - \int_0^{\infty} t' \phi(T,t') dt' = A(T) t - B(T) \quad \text{VI.10}$$

d.h. es ergibt sich eine Gerade. Durch least-square-fit wurde die Steigung  $A(T) = \int_0^{\infty} \phi(T,t') dt'$  und der Achsenabschnitt  $B(T) = \int_0^{\infty} t' \phi(T,t') dt'$  bestimmt. Daraus erhält man:

$$\overline{t(T)} = \frac{B(T)}{A(T)} = \overline{t(E)} \quad \text{VI.10a}$$

Das zweite Zeitmoment wurde nach der aus Gleichung VI.9 folgenden einfacheren Beziehung für  $T_1 < \Delta$  bestimmt.

$$\int_0^{\infty} t^2 \phi(T,t) dt = 2 \int_0^{T_1} Z(T,t) dt - 2T_1 Z(T,T_1) + T_1^2 \int_0^{T_1} \phi(T,t) dt \quad \text{VI.11}$$

Abb.13 zeigt, daß die  $Z(T,t)$ -Kurven für kleine  $t$  eine positive Krümmung haben und erst nach einiger Zeit eine lineare  $t$ -Abhängigkeit zeigen. Mit der Beziehung (Gleichung VI.9a):

$$\int_0^x \phi(T,t) dt = \left. \frac{\partial Z(T,t)}{\partial t} \right|_{t=x} \quad \text{für } x < \Delta \text{ läßt sich Gleichung VI.11 anschaulich interpretieren.}$$

---

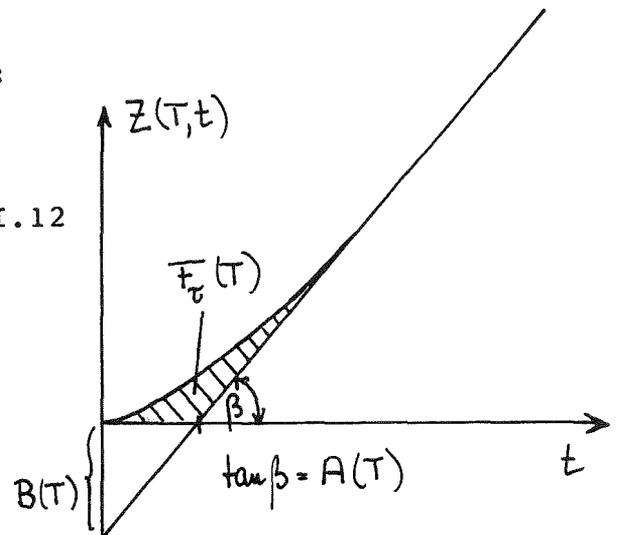
\*) Die Flugzeitauflösungskorrektur ist bereits ausgeführt.

$$\int_0^{\infty} t^2 \phi(T, t) dt \text{ ist gegeben durch } 2 F_{\tau}(T) + \frac{B^2(T)}{A(T)}$$

Damit erhält man für die Varianz  $\tau(E)$ :

$$\tau(T) \equiv \tau(E) = \left[ 2 \frac{F_{\tau}(T)}{A(T)} \right]^{1/2} \quad \text{VI.12}$$

wobei  $F_{\tau}(T)$  die schraffierte Fläche bedeutet.



Zur Bestimmung der epithermischen Varianzwerte  $\tau(E)$  müssen demnach Meßwerte mit geringer Zählrate  $Z(T, t)$  ausgewertet werden. Außerdem geht der gekrümmte Verlauf von  $Z(T, t)$  über  $t$  bereits für  $t \geq 25 \mu s$  in einen linearen über. Der Wert von  $F_{\tau}(T)$  ist demnach klein. Deshalb wurde zur Bestimmung von  $\tau(E)$  eine Kontrollmessung im Intervall  $0 \leq t \leq 30 \mu s$  in äquidistanten  $t$ -Schritten der Schrittweite  $\Delta t = 4 \mu s$  durchgeführt. Die Quellneutronenimpulsbreite betrug  $2 \mu s$ . Diese Kontrollmessungen wurden an einem 98%  $pH_2$ -Moderator durchgeführt. Die Halbwertsbreite  $\Delta$  der Auflösungsfunktion  $F(t-t')$  betrug  $50,5 \mu s$ .

## VII. Die Ergebnisse der Messungen, Vergleich mit Rechenergebnissen und Diskussion

### VII.1 Asymptotische und zeitabhängige Spektren

Wenn alle Neutronenenergiegruppen in einem Moderator einen einheitlichen exponentiellen Zerfall aufweisen, bedeutet dies, daß ein bezüglich der energetischen Form der Spektren asymptotischer Zustand existiert. Im Rahmen der Untersuchung der Thermalisierungseigenschaften des flüssigen Wasserstoffs wurde die Existenz eines asymptotischen Zustands an verschiedenen  $op-H_2$  Mischungen experimentell und theoretisch überprüft.

Abb.14 zeigt das gemessene senkrechte Ausflußspektrum für einen 72% pD<sub>2</sub>-Moderator zu verschiedenen, in der Abbildung angegebenen Neutronenverweilzeiten im Moderator. Die Form der Spektren ändert sich für die gewählten Zeiten nicht. Die Vermutung, daß ein asymptotischer Zustand existiert, liegt demnach nahe. Da aber die Neutronenverweilzeiten im Moderator, für welche Spektren gemessen werden können, aus Intensitätsgründen nach oben begrenzt sind, muß die Frage der Existenz eines asymptotischen Zustands theoretisch geprüft werden. Zur Beantwortung dieser Frage genügt eine Berechnung des zeitabhängigen Flusses in Diffusionsnäherung, denn ein asymptotischer Zustand zerfällt in der Moderatormitte mit derselben Zerfallskonstanten  $\alpha$  wie an der Oberfläche. Da nur die Existenz eines asymptotischen Zustandes zu beweisen ist, ist die Frage der Flußanfangsverteilung, mit der Gleichung III.18 zu lösen ist, unbedeutend. Die im folgenden zitierten Ergebnisse der Berechnung des zeitabhängigen thermischen Flusses wurden mit der nach Gleichung III.19 gegebenen Anfangsverteilung  $\phi(E, t = \bar{t})$  berechnet, wobei  $\bar{t} = \frac{2}{\Sigma_0 v_g}$  ist. Um festzustellen, ob die Grenzenergie  $E_g$  einen numerischen Einfluß auf den asymptotischen Zustand hat, wurden Rechnungen mit zwei verschiedenen Grenzenergien  $E_g$  ( $E_{g1} = 45,7$  meV und  $E_{g2} = 268$  meV) durchgeführt. Da im H<sub>2</sub>-Molekül höhere Rotationsübergänge 1 mit  $E_1 = 0,00737$  1<sup>\*</sup> (1-1) möglich sind, wirken sich chemische Bindungseffekte auch im epithermischen Energiegebiet aus. Die asymptotische Lebensdauer  $1/\alpha$  und das asymptotische Spektrum sind als Ergebnis dieses numerischen Tests unabhängig von der Wahl der Grenzenergie  $E_g$ . Nicht angeregte Freiheitsgrade der Bewegung im Moderator, zu deren Anregung durch inelastische Prozesse das Neutron einen Energieübertrag im epithermischen Energiebereich leisten muß, beeinflussen nur die Zeitabhängigkeit des Bremsprozesses. Für die asymptotischen Größen ist der Bremsprozeß aber unbedeutend, denn das thermische Neutron hat nach wenigen Stößen seine Herkunft vergessen.

Zur anschaulichen Interpretation zeigt die Abb.15 den mit Gleichung III.18 berechneten Zeitverlauf einiger ausgewählter

Energiegruppen für den 77% p<sub>H</sub><sub>2</sub>-Moderator. Wie Abb.15 zeigt, ist etwa 250 μs nach Einschub der Quellneutronen die Thermalisierungsphase beendet. Es hat sich ein asymptotischer Zustand gebildet, der mit der Abklingkonstanten 1/α = 123 μs zerfällt. Eine Lebensdauerermessung ergibt für Mischung 1 ab ca. 160 μs nach dem Einschub der Quellneutronen einen exponentiellen Zerfall mit der Abklingkonstanten 1/α = 125 μs. Der gerechnete Wert für 1/α ist in befriedigender Übereinstimmung mit dem gemessenen Wert. Aus der Berechnung des zeitabhängigen Spektrums für Mischung 1 ergibt sich, daß die mittlere Energie E(t) mit:

$$\overline{E(t)} = \frac{\int_0^{\infty} E \phi(E, t) dE}{\int_0^{\infty} \phi(E, t) dE} \quad \text{VII.1}$$

180 μs nach dem Einschub der Quellneutronen nur noch 2,5% über dem asymptotischen Wert liegt. Abb.16 zeigt den berechneten Zeitverlauf der mittleren Energie für den 77% p<sub>H</sub><sub>2</sub>- und einen 85% p<sub>H</sub><sub>2</sub>-Moderator. Aufgetragen ist der Quotient  $\overline{E}/2kT$ . Er gibt die Abweichung der mittleren Energie von der eines Maxwellspektrums M(E) an. Für den 85% p<sub>H</sub><sub>2</sub>-Moderator ist die Thermalisierungsphase erst ca. 350 μs nach dem Einschub der Quellneutronen beendet. Die Messung eines asymptotischen Spektrums ist dann aus Intensitätsgründen nicht mehr möglich. Deshalb wurden die Messungen nur an Moderatoren mit p<sub>H</sub><sub>2</sub>-Konzentrationen < 80% durchgeführt.

Die Abb.17 zeigt gemessene und berechnete senkrechte Ausflußspektren für die drei p<sub>H</sub><sub>2</sub>-Konzentrationen 41%, 59% und 66%. Zur besseren Übersicht sind die Spektren in Abb.17 mit willkürlichen Normierungsfaktoren multipliziert. Die Spektrumsform aller gemessenen Spektren weicht beträchtlich von einer Maxwellverteilung ab. Zum Vergleich zeigt Abb.17 eine Maxwellverteilung bei T = 20,4°K. Durch bevorzugte Energiegewinnprozesse (Rotationsübergang 1→0, d.h. Übergang eines Ortho- in ein Para-Molekül) liegt die mittlere Energie der

Spektren beträchtlich über der Energie  $E = kT \approx 1,76 \text{ meV}$  bei  $T = 20,4^\circ\text{K}$ . Dabei werden bevorzugt niederenergetische Neutronen durch Aufwärtsstreuung in das Energiegebiet um  $14,7 \text{ meV}$  gestreut. Die Form der Spektren ist abhängig von der OP-Zusammensetzung. Ihre mittlere Energie wächst mit steigender  $\text{oH}_2$ -Konzentration, entsprechend einer Zunahme der Energiegewinnprozesse.

Abb.18 zeigt die aus den gemessenen asymptotischen Ausflussspektren  $F_+(R,E,l)$  bestimmte mittlere Energie als Funktion der Ortho-Konzentration. Die durchgezogene Kurve 1 ist zur besseren Übersicht an die Meßwerte zeichnerisch angepaßt. Kurve 2 zeigt den Verlauf der in Diffusionsnäherung berechneten mittleren Energie. Beide Kurven zeigen dieselbe Abhängigkeit von der  $\text{OH}_2$ -Konzentration. Wegen der Energieabhängigkeit der Transportweglänge sind die Ausflussspektren stets heißer als Spektren aus der Moderatormitte (Milne-Problem [47,48]). Die Flußhärtung ergibt sich als mittlerer Abstand der beiden Kurven zu ca. 18%. Sie liegt damit in derselben Größenordnung wie für einen  $\text{H}_2\text{O}$ -Moderator [48].

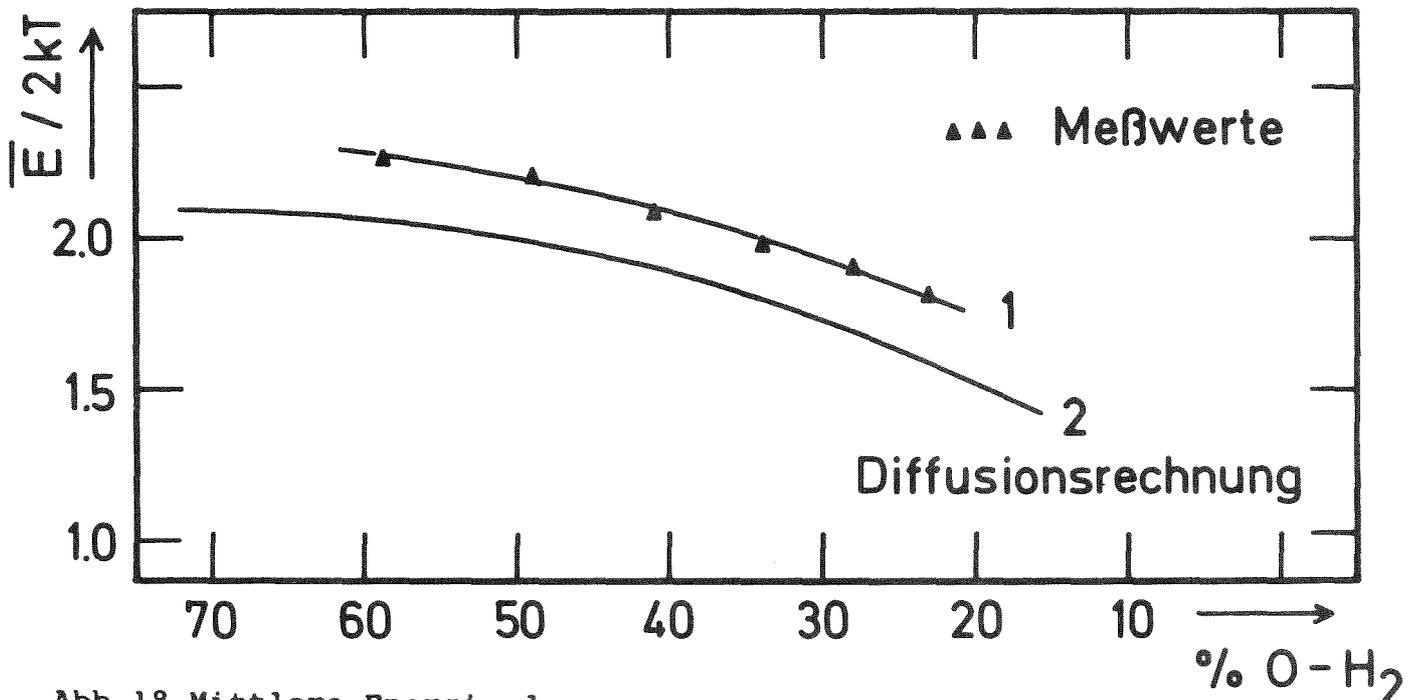


Abb.18 Mittlere Energie der gemessenen asymptotischen Ausflussspektren in Abhängigkeit von der Ortho-Konzentration und Vergleich mit in Diffusionsnäherung gerechneten Werten für die Moderatormitte

Zur Berechnung der asymptotischen Ausflußspektren in Zylindergeometrie wurde der THERMOS-Code verwendet, siehe Kapitel III.2. Die Berechnung erfordert eine Behandlung der winkelabhängigen Transportgleichung. Dazu wurde die in THERMOS berechnete isotrope orts- und energieabhängige Stoßdichte

$$P(x, E) = \int_0^{E_0} \Sigma_0(E' \rightarrow E) \phi(E', x) dE'$$

in die winkelabhängige Integralgleichung eingeführt. Man erhält für  $\mu = 1$  (senkrechte Ausflußrichtung) am Rand des Moderators:

$$F_+(R, E, \mu=1) = \int_0^R P(r', E) \exp[-\Sigma_t(E) |R-r'|] dr' \quad \text{VII.2}$$

Die Übereinstimmung der gemessenen und berechneten senkrechten asymptotischen Ausflußspektren ist, wie man aus den Abb.14 und 17 ersieht, gut. Da die Spektrumsform stark von einer Maxwellverteilung abweicht, diese Abweichung aber eine Folge der Streueigenschaften des Ortho- $H_2$ -Moleküls ist, hängen die gerechneten Spektren empfindlich von der Güte der verwendeten Streukerne ab. Abb.19 zeigt einen Vergleich von gerechneten Spektren mit einem gemessenen Spektrum für eine Parakonzentration von 52%. Als Streukerne wurden der Gaskern  $\overline{\Sigma_{18}}$  und der nach Gleichung II.15 aus einer Phononenfrequenzverteilung  $\rho(\beta)$  berechnete Streukern in  $P_0$ -Näherung verwendet. Wie Abb.19 zeigt, überschätzt das Gasmodell die Thermalisierungseigenschaften der  $H_2$ -Moleküle. Da in diesem Modell das Molekül unbehinderte Translationsbewegungen ausführen kann, kann ein Neutron bei jedem Stoß Energie an das Molekül übertragen.

Die Tabelle 4 zeigt schließlich die durch Mittelung über berechnete asymptotische Spektren (für  $B^2=0$ ) ermittelten Neutronentransportweglängen  $\overline{\lambda}_{tr}$  in flüssigem Wasserstoff in Abhängigkeit von der  $OPH_2$ -Konzentration.  $\overline{\lambda}_{tr}$  ist dabei definiert als:

$$\bar{\lambda}_{tr} = \frac{\int_0^{\infty} \frac{\phi_{as}(E) dE}{\Sigma_0(E) + \Sigma_a(E) - \Sigma_1(E)}}{\int_0^{\infty} \phi_{as}(E) dE}$$

VII.3

Tabelle 4

% pH <sub>2</sub>	33	38	47	62	66	72	85	90	95	98
λ <sub>tr</sub> (cm)	0,868	0,926	1,05	1,378	1,5	1,75	2,75	3,54	5,18	7,1

Es gibt leider keine experimentellen Daten über Transport- und Diffusionslängen in Wasserstoff, so daß die Güte der in Tabelle 2 angegebenen Daten nicht überprüft werden kann.

VII.2 Die Zeitmomente

Die Abb.20 und 21 zeigen das erste Zeitmoment  $\bar{t}(E)$  und die Varianz  $\tau(E) = \sqrt{t^2(E) - \bar{t}(E)^2}$  für die beiden OPH<sub>2</sub>-Mischungen 77% pH<sub>2</sub> und 98% pH<sub>2</sub>. Die Punkte geben die Ergebnisse der Messung, die durchgezogene Linie den gerechneten Verlauf wieder. Zur Berechnung der Zeitmomente wurden die Streukerne für flüssigen Wasserstoff in P<sub>0</sub>-Näherung behandelt. Die Grenzenergie wurde bei E<sub>g</sub> = 1,5 eV angenommen. Die Rechnung startet demnach mit dem bei E<sub>g</sub> = 1,5 eV vorgegebenen zeitabhängigen Fluß  $\phi(E_g, t)$ , wobei die Zeitabhängigkeit als  $\delta$ -Funktion um t = 0 angenommen wird. In Wirklichkeit müssen die 14 MeV-Quellneutronen durch Stoßprozesse abgebremst werden, d.h. die in der Rechnung benutzte 1,5 eV-Ausgangsverteilung besitzt eine zeitliche Verteilung P(t) mit endlicher Breite. Dann ist die zeitliche Verteilung  $\phi(t)$  des

thermischen Neutronenpulses gegeben als:

$$\phi(t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau G(t-\tau)P(\tau) \quad \text{VII.3}$$

$G(t)$  ist die Zeitverteilung des thermischen Neutronenpulses bei  $\delta$ -förmiger Ausgangsverteilung  $P(t)$ . Aus VII.3 folgt, daß das erste Zeitmoment und die Varianz der gefalteten Funktion  $\phi(t)$  darstellbar sind als:

$$\begin{aligned} \bar{t} &= \bar{t}_G + \bar{t}_P \\ \tau^2 &= \tau_G^2 + \tau_P^2 \end{aligned} \quad \text{VII.4}$$

$\bar{t}_P$  berechnet sich bei der Bremsung von Neutronen an freien ruhenden Kernen zu  $\bar{t}_P = \frac{3}{\Sigma_0 v_G} \approx 2 \mu\text{s}$  für  $E_G = 1,5 \text{ eV}$  für Wasserstoff  $\langle \bar{v} \rangle$ . Analog erhält man für  $\tau_P^2 = \frac{3}{(\Sigma_0 v_G)^2}$ .

Die Zeitmomente (Index G) sind damit gemäß VII.4 zu korrigieren. Diskussion der Zeitmomentmeßergebnisse für Mischung 1 (Abb.20):

Für Energien  $E > 40 \text{ meV}$  zeigen sowohl die Varianz als auch das erste Zeitmoment einen  $\frac{1}{v}$ -Verlauf, wie er aus Berechnungen des zeitabhängigen Flusses  $\langle \bar{v} \rangle$  bei Annahme eines unendlichen Mediums und eines energieunabhängigen Streuquerschnitts zu erwarten ist. Die Werte für  $\bar{t}(E)$  und  $\tau(E)$  sind in dem betrachteten Energiegebiet klein und proportional zur Stoßzeit  $t_S \sim \frac{1}{\Sigma_0 v}$  mit  $\Sigma_0 =$  energieunabhängiger Streuquerschnitt (20,3 barn).

Im Energiegebiet um 40 meV geht der Bremsprozeß in einen Thermalisierungsprozeß über. Dies erkennt man an dem steilen Anstieg der  $\bar{t}(E)$ - und  $\tau(E)$ -Werte. Dabei liegen die Varianzwerte über den  $\bar{t}(E)$ -Werten entsprechend der Tatsache, daß der exponentiell abklingende Teil der  $\phi(t)$ -Kurve einen wesentlichen

Beitrag zu  $\tau(E)$  liefert. Das Energiegebiet, in dem Thermalisierungsprozesse bedeutsam werden, liegt als Folge der bevorzugten Energiegewinnprozesse (Aufwärtsstreuung der langsamen Neutronen durch den Rotationsübergang  $1 \rightarrow 0$ ) in einem Bereich, in dem für einen Moderator, der das Prinzip des detaillierten Gleichgewichts erfüllt, Bremsprozesse dominieren sollten.

Im Energiegebiet  $E < 10$  meV erreicht die Varianz einen angenähert konstanten Wert, der durch die Lebensdauer  $\frac{1}{\alpha}$  des thermalisierten Neutronenfeldes gegeben ist und der von den Absorptions- und den Thermalisierungseigenschaften des Moderators abhängt.  $\overline{t(E)}$  zeigt auch in diesem Energiegebiet einen energieabhängigen Verlauf, der dadurch zustande kommt, daß sich ein Gleichgewichtszustand für die langsamen Neutronen erst nach längeren Verweilzeiten im Moderator einstellt.

Die berechneten  $\overline{t(E)}$  und  $\tau(E)$ -Werte geben den energieabhängigen Verlauf der gemessenen Werte befriedigend wieder. Allerdings überschätzt die Rechnung den Beginn der Thermalisierungsphase. Dies ist nicht auf einen Fehler im verwendeten Streukern zurückzuführen. Testrechnungen an  $H_2O$ , die mit dem Haywood-Streukern [49] durchgeführt wurden, zeigen diesen Effekt ebenfalls. Weiterhin zeigen die Rechenergebnisse eine starke Ortsabhängigkeit der thermischen  $\overline{t(E)}$ -Werte.  $\overline{t(E)}$  steigt um ca. 20% an bei Übergang von der Moderatoroberfläche zur Moderatormitte.

Eine Berechnung der Zeitmomente für einen in axialer Richtung unendlich ausgedehnten Zylinder reduziert diese Ortsabhängigkeit auf ca. 10%. Der Radius des unendlichen Zylinders wurde aus der Bedingung, daß das geometrische Buckling für beide Zylinder gleich sein soll, zu 6,1 cm bestimmt. Dabei wurde die Gültigkeit der Extrapolationslängenbeziehung  $d = 0,71 \overline{\lambda}_{tr}$  angenommen.  $\overline{\lambda}_{tr}$  wurde der Tabelle 4 entnommen. Als Ergebnis dieser Rechnung erhöhen sich sowohl die  $\overline{t(E)}$ -Werte als auch die Varianzwerte für Energien  $E < 20$  meV um ca. 13% gegenüber den Werten für den endlichen Zylinder. Damit stimmen jetzt

die  $\overline{t(E)}$ -Werte gut mit den Meßwerten überein, während die gerechneten Varianzwerte um 13% zu hoch liegen.

Diskussion der Zeitmomentmeßergebnisse für Mischung 2 (Abb.21)

Für den 98%  $pH_2$ -Moderator zeigen  $\overline{t(E)}$  und  $\tau(E)$  einen ähnlichen Verlauf mit der Energie. Da eine asymptotische Verteilung nicht existiert (jede Energiegruppe zeigt einen andersartigen Zerfall), wird die Varianz  $\tau(E)$  im thermischen Bereich keinen konstanten Wert annehmen. Durch den scharfen Abfall des Streuquerschnitts für Energien  $< 30$  meV wird nur eine unvollständige Thermalisierung erreicht. Deshalb ist der Übergang von der Brems- in die Thermalisierungsphase nur schwach ausgebildet.  $\overline{t(E)}$  und  $\tau(E)$  werden, nachdem das Neutron die Thermalisierungsphase durchlaufen hat ( $E < 15$  meV) durch die Flugzeit im Moderator bestimmt und damit wieder proportional zu  $\frac{1}{v}$ .

Ein  $\frac{1}{v}$ -Verlauf von  $\tau(E)$  bringt bei TOF-Experimenten gegenüber einem konstanten  $\tau(E)$  keine Verschlechterung der TOF-Möglichkeiten. Da die Fluglänge  $L$  stets nach den Bedürfnissen der Energieauflösung gewählt wird, erhält man für ein konstantes  $\tau(E)$  mit abnehmender Energie eine besser werdende Energieauflösung gemäß:  $\frac{\Delta E}{E} \sim \frac{\tau(E)}{L} v$ , die nur die Möglichkeit einer Kanalzusammenfassung zur Verbesserung der Statistik ermöglicht. Dagegen bedeutet ein  $\frac{1}{v}$ -Verlauf von  $\tau(E)$  eine konstante Energieauflösung.

Die berechneten  $\overline{t(E)}$ - und  $\tau(E)$ -Werte geben den gemessenen Verlauf befriedigend wieder. Die Rechnung überschätzt die Varianzwerte im Thermalisierungsgebiet, bleibt aber im gesamten Energiebereich innerhalb der experimentellen Fehlergrenzen.

#### Fehlerdiskussion der Zeitmomentmessungen

Die Neutronenverweilzeiten im Moderator sind aus folgenden Gründen unsicher:

- 1) Der Chopperöffnungszeitpunkt kann nur auf  $\pm 0,5 \mu s$  genau bestimmt werden.  $0,5 \mu s$  bedeutet bei einer Chopperdrehzahl

von 12600 U/min eine Ortsunsicherheit von 0,11 mm.

Daraus folgt, daß der Chopperschlitz und die Strahlblenden-  
schlitze sorgfältig zentriert und sehr sauber gearbeitet  
sein müssen.

- 2) Die Koinzidenzprüfung erlaubt ebenfalls Pulsschwankungen  
von  $\pm 0,5 \mu\text{s}$ , da mit Impulsen endlicher Breite gearbeitet  
werden muß.
- 3) Der Quellimpuls hat eine endliche Breite, die im Bereich  
von  $2 \mu\text{s}$  bis  $10 \mu\text{s}$  variiert wurde. Dabei wurde die Ver-  
weilzeit stets von dem Zeitmittelpunkt des Quellimpulses  
gemessen.

Aus Punkt 1) und 2) folgt, daß die Verweilzeiten auf  $\pm 1 \mu\text{s}$   
genau sind. Diese Zeitunsicherheit kann bei der Bestimmung  
der Zeitmomente im thermischen Bereich vernachlässigt werden.  
Sie muß aber im epithermischen Bereich berücksichtigt werden.  
In die Bestimmung von  $t(E)$  nach Gleichung VI.10a geht die  
Zeitunsicherheit voll ein, da der Achsenabschnitt der Geraden  
bei einer Zeitunsicherheit von  $\pm 1 \mu\text{s}$  nur im Bereich  $B(T) \pm A(T)$   
bestimmt werden kann.

Auf Grund der anschaulichen Deutung der Bestimmung der epi-  
thermischen Varianz (Gleichung VI.12) folgt, daß durch die  
Zeitunsicherheit von  $\pm 1 \mu\text{s}$  verbunden mit den statistischen  
Fehlern auf Grund der geringen Zählrate Unsicherheiten bei  
der graphischen Bestimmung der Fläche  $F_T$  von bis zu  $\pm 60\%$   
möglich sind. Dies bedeutet aber Fehler in den Varianzwerten  
von  $\pm 30\%$ .

Zur Auswertung von  $\overline{t(E)}$  und  $\tau(E)$  für Mischung 1 wurde für  
Energien  $E > 23 \text{ meV}$  der Beitrag zu  $\phi_1(T)$  und  $\phi_2(T)$  (Gleichung  
VI.6) durch den exponentiell mit der asymptotischen Zerfalls-  
konstanten  $\frac{1}{\alpha} = 125 \mu\text{s}$  zerfallenden Teil von  $Z(T,t)$  rechnerisch  
bestimmt. Dazu wurde durch Fit einer Exponentialfunktion mit  
der gemessenen Zerfallskonstanten  $\frac{1}{\alpha}$  an die Meßpunkte für  
 $t \geq 215 \mu\text{s}$  der Amplitudenfaktor  $Z(T,A)$  bestimmt. Die in der  
Abb.21 angegebenen Unsicherheiten in den  $\overline{t(E)}$ - und  $\tau(E)$ -Werten

sind durch die statistischen Fehler der Meßdaten bedingt. Durch lange Meßzeiten wurden diese unter 10% gehalten.

Im Zwischengebiet (Übergang von der Brems- in die Thermalisierungsphase) konnte aus Intensitätsgründen für die Energiegruppen mit  $E > 23$  meV ein exponentieller Zerfall der  $Z(T,t)$ -Kurven nicht nachgewiesen werden (vgl. Kurve 1 der Abb. 11). Die Messungen asymptotischer Spektren und die Berechnung des zeitabhängigen Flusses bestätigen die Existenz dieses Zerfalls. Die Amplitudenwerte  $Z(T,t)$  bei  $t = 252,5 \mu\text{s}$  wurden aus der hochenergetischen Form der asymptotischen Spektren (sie kann, wie Abb.17 zeigt, durch einen Maxwellverlauf bei der Temperatur  $T = 36^\circ\text{K}$  dargestellt werden) berechnet. Mit diesen Werten und der asymptotischen Zerfallskonstanten  $\frac{1}{\alpha} = 125 \mu\text{s}$  wurden die Beiträge zu den Zeitmomenten im Energiegebiet  $23 \text{ meV} \leq E \leq 35 \text{ meV}$  berechnet. Für höhere Neutronenenergien ist der exponentiell abklingende Teil der  $Z(T,t)$ -Kurve ohne Belang, da die Neutronen-Intensität bei Erreichen des asymptotischen Zustands vernachlässigbar klein ist.

In dem 98%  $\text{pH}_2$ -Moderator existiert keine asymptotische Verteilung; deshalb sind die Beiträge der  $Z(T,t)$ -Werte zu  $\overline{t(E)}$  und  $\tau(E)$  für  $t > 328 \mu\text{s}$  nicht genau bekannt. Unter der Annahme, daß jede Energiegruppe für  $t > 6\Delta = 261,6 \mu\text{s}$  exponentiell zerfällt, können diese Beiträge aus den gemessenen  $Z(T,t)$ -Kurven ermittelt werden. Dazu wird die Amplitude  $Z(T,6\Delta)$  und die Zerfallskonstante  $\frac{1}{\alpha(T)}$  durch Fit einer Exponentialfunktion an die Meßwerte für  $t \geq 261,6 \mu\text{s}$  bestimmt. Dies ergibt eine Abschätzung nach unten hin, denn die Zeitabhängigkeit der  $Z(T,t)$ -Werte kann für große  $t$  nur schwächer werden, entsprechend einer Vergrößerung der  $\frac{1}{\alpha}$ -Werte. Da andererseits die Intensität der Energiegruppen, deren Zerfallskonstante klein ist (z.B. Kurve No. 2, 3, 4, und 5 in Abb.12), bereits bei  $t = 300 \mu\text{s}$  gering ist, wird sich eine Änderung von  $\frac{1}{\alpha(T)}$  für  $t > 300 \mu\text{s}$  in den  $\overline{t(E)}$ - und  $\tau(E)$ -Werten nur wenig bemerkbar machen. So erhöht sich z.B. für  $E = 5,3 \text{ meV}$   $\overline{t(E)}$  unter der Annahme, daß der im Intervall

$250 \mu\text{s} \leq t \leq 300 \mu\text{s}$  an die Meßwerte angepasste  $\frac{1}{\alpha}$ -Wert für  $t \geq 300 \mu\text{s}$  in den Wert  $\frac{1}{\alpha} = 90 \mu\text{s}$  übergeht um ca. 4%.  
 $\tau(E)$  erhöht sich unter denselben Annahmen um ca. 11,6%.

### VII.3 Stationäre Ausflußspektren

Bei bekannten  $Z(T,t)$  kann nach Gleichung VI.7 das stationäre Spektrum  $\phi_0(T)$  berechnet werden. Damit ist eine einfache Kontrolle der Meßmethode zur Bestimmung der Zeitmomente auf systematische Fehler möglich. Die nach Gleichung VI.7 berechneten stationären Ausflußspektren für die Mischungen 1 und 2 wurden mit direkt gemessenen verglichen. Dabei konnten keine systematischen Abweichungen festgestellt werden. Die Übereinstimmung lag im gesamten Energiegebiet im Rahmen der Meßgenauigkeit, d.h. innerhalb weniger Prozent.

Stationäre Spektren sind zur anschaulichen Interpretation der Thermalisierungs- und Transportprozesse in Wasserstoff besonders geeignet. Abb.22 zeigt die an flüssigem Wasserstoff für verschiedene  $\text{opH}_2$ -Mischungen gemessenen Spektren, normiert auf die gleiche Quellneutronenintensität.

Im Ausfluß zeigt das 98%  $\text{pH}_2$ -Spektrum eine um bis zu 45% höhere Intensität im thermischen Energiegebiet als die  $\text{OP-H}_2$ -Spektren. Der maximale Intensitätsunterschied ergibt sich zwischen dem 98%  $\text{pH}_2$  und dem 33%  $\text{pH}_2$  Spektrum. Dieser Intensitätsunterschied ist eine Folge des Streuquerschnittverlaufs des  $\text{pH}_2$ -Moleküls. Der Wert von  $\sigma_{\text{S-para}}$  fällt unterhalb von ca. 20 meV auf wenige barn ab (vgl. die Abb.3 und 4).

Dadurch wird der  $\text{pH}_2$ -Moderator für Neutronen mit Energien  $E < 20 \text{ meV}$  transparent. Zur Intensität des Ausflußspektrums bei der Energie  $E$  tragen Neutronen bei, die einen letzten Stoß in einer Schichtdicke von einigen  $\bar{\lambda}_{\text{tr}}$  gemacht haben.  $\bar{\lambda}_{\text{tr}}$  erreicht für den 98%  $\text{pH}_2$ -Moderator die Größenordnung des Moderatorradius, so daß das ganze Moderatorvolumen zum Ausfluß beiträgt.

Die thermische Spektrumsform weicht stark von einer Maxwellverteilung ab, da die Neutronen wegen der nur wenige  $\bar{\lambda}_{tr}$  betragenden Gefäßdimension nicht mit dem Moderator ins Gleichgewicht kommen können. Demzufolge ist die thermische Spektrumsform für den 98%  $pH_2$ -Moderator von den Gefäßdimensionen abhängig. Sie würde bei verschwindender Leckage ( $B^2 = 0$ ) für einen reinen  $pH_2$ -Moderator in eine Maxwellverteilung übergehen.

Die  $opH_2$ -Ausflußspektren zeigen im Energiegebiet unterhalb 20 meV einen prinzipiell ähnlichen Verlauf mit der Energie wie das  $pH_2$ -Spektrum. Die von einem Maxwellverlauf deutlich abweichende Form der Spektren ist eine Folge der Thermalisierungseigenschaften des Ortho  $H_2$ -Moleküls. Die thermische Spektrumsform im Bereich von 33%  $pH_2$  bis 92% ist unabhängig von der para-Konzentration im Gegensatz zu der Form der asymptotischen Spektren. Dies deutet darauf hin, daß im thermischen Energiegebiet kein Gleichgewichtszustand erreicht werden kann, weil die Ausflußwahrscheinlichkeit eines Neutrons, welches einen Energiegewinnprozeß durchlaufen hat, größer ist als die Wahrscheinlichkeit, daß das Neutron, durch eine anschließende Wechselwirkung mit den Phononen des Gitters, mit dem Moderator ins Gleichgewicht kommen kann.

Im epithermischen Energiegebiet zeigen die Spektren einen Verlauf, der von der Ortho-Konzentration abhängt. So zeigt das 98%  $pH_2$ -Spektrum gegenüber dem 33%  $pH_2$ -Spektrum eine deutliche Absenkung im Energiegebiet  $35 \text{ meV} < E < 120 \text{ meV}$ . Diese Unterschiede lassen sich aus dem Verlauf der Teilquerschnitte für das Ortho- und das Para-Molekül erklären (vgl. Abb.5a und 5b). Der Teilquerschnitt  $l = 2$  ist für das  $pH_2$ -Molekül <sup>\*</sup> groß, d.h. die Wahrscheinlichkeit für inelastische Prozesse, bei denen das Neutron durch Rotationsanregung des  $pH_2$ -Moleküls Energie verliert, ist groß. Damit werden die Neutronen bevorzugt aus dem betrachteten Energiegebiet herausgestreut. Für das Ortho-Molekül ist der Teilquerschnitt für  $l = 3$  für Energien  $E < 120 \text{ meV}$  kleiner als der  $l = 2$  Teilquerschnitt; demnach ist die Wahrscheinlichkeit einer Herausstreuung aus dem betrachteten Ener-

---

\*) (im betrachteten Energiegebiet)

giebiet durch Ortho-Para-Übergänge klein. Der Hauptbeitrag zum Streuquerschnitt des Ortho-Moleküls kommt vom Teilquerschnitt  $1 = 2$ . Damit wird das epithermische Neutron im wesentlichen durch elastische Prozesse gebremst, so daß die Spektrumsform den bekannten Verlauf (proportional  $\frac{1}{E}$ ) zeigen sollte.

Abb.23 zeigt die mit dem THERMOS-Code nach Gleichung III.4 berechneten senkrechten Ausflußspektren für den 77% p<sub>H</sub><sub>2</sub>-Moderator für zwei verschiedene Streukernmodelle. Kurve 1 wurde für ein Wasserstoffgas gerechnet. Der Kurve 2 liegt das realistische, in dieser Arbeit entworfene Streukernmodell für die Flüssigkeit zugrunde. Die thermische Spektrumsform wird von Kurve 2 befriedigend wiedergegeben. Die Rechnung überschätzt die Intensität des thermischen Spektrums aus folgenden Gründen:

- 1) Für Energien  $E > 100$  meV wird das Gasmodell zur Streukernberechnung verwendet. Dieses Modell überschätzt die Abwärtsstreueigenschaften des flüssigen Wasserstoffs.
- 2) Die Winkelabhängigkeit des verwendeten Streukerns wird in P<sub>0</sub>-Näherung (isotrope Näherung) approximiert. Diese Näherung vermag die Spektrumshärtung des stationären Ausflußspektrums nicht exakt wiederzugeben, wie in [46] für einen H<sub>2</sub>O-Moderator gezeigt wird.

Kurve 1 ergibt auch im thermischen Energiegebiet keine gute Übereinstimmung mit dem gemessenen Spektrum. Das Gasmodell überschätzt offensichtlich die Thermalisierungseigenschaften der Flüssigkeit.

### VIII. Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschreibt Untersuchungen zur Neutronen-thermalisierung in flüssigen Ortho-Para-Wasserstoffgemischen der Temperatur  $T = 20,4 \text{ }^\circ\text{K}$ . Untersucht wurden für mehrere OP- $\text{H}_2$ -Mischungen im Bereich 33%  $\text{pH}_2$  bis 98%  $\text{pH}_2$  stationäre und asymptotische Spektren. Außerdem wurde das erste Zeitmoment  $\bar{t}(E)$  und die Varianz  $\tau(E)$  für eine 77% und eine 98%  $\text{pH}_2$ -Mischung experimentell bestimmt.

Es zeigte sich, daß auf Grund der verschiedenartigen neutronenphysikalischen Eigenschaften des Ortho- und des Para- $\text{H}_2$ -Moleküls deutliche Unterschiede in den Thermalisierungseigenschaften der beiden Moleküle feststellbar sind. Insbesondere ergab sich neben dem Nachweis der Existenz eines asymptotischen Zustandes in Ortho-Para-Mischungen eine Abhängigkeit der asymptotischen Spektrumsform von der Ortho-Konzentration. Mit steigender Ortho-Konzentration steigt auch die mittlere Energie der Spektren, d.h. der Anteil der "hochenergetischen" Neutronen nimmt zu. Dies ist auf das Auftreten von Spinumklapp-Prozessen, hervorgerufen durch die spinabhängige Neutron-Proton-Wechselwirkung, zurückzuführen. Diese inelastischen Prozesse stellen Energiegewinnprozesse dar, bei denen das niederenergetische Neutron den Energiebetrag  $\Delta E = 14,74 \text{ meV}$  gewinnt.

Die Form des thermischen Teils der stationären Spektren ist dagegen für Ortho-Konzentrationen  $> 10\%$  unabhängig von der OP-Konzentration. Sie weicht allerdings ebenso wie die Form der asymptotischen Spektren stark von einer Maxwellverteilung ab.

Zur theoretischen Interpretation der experimentellen Resultate ist eine Berechnung des Streukerns  $\Sigma_0(E' \rightarrow E)$  nötig. Dabei konnte ein existierendes Rechenprogramm zur Berechnung des doppelt-differentiellen Streuquerschnitts  $d^2\sigma/d\Omega d\epsilon$  verwendet werden. In diesem Programm wird der Translationsanteil von  $d^2\sigma/d\Omega d\epsilon$  in Gasnäherung behandelt. Diese Näherung ist, wie in der vorliegenden Arbeit gezeigt wurde, nicht geeignet zur Beschreibung

der Thermalisierung in flüssigem Wasserstoff. Deshalb wurde das Translationsmodell durch ein realistischeres Modell zur Beschreibung der Dynamik der Flüssigkeit ersetzt.

Die mit diesem Modell berechneten stationären und asymptotischen Spektren sind in guter Übereinstimmung mit den gemessenen Spektren. Dabei wurde zur Berechnung der stationären und der asymptotischen Spektren das THERMOS-Programm verwendet. Die zeitabhängigen theoretischen Untersuchungen wurden im Rahmen der Diffusionsnäherung nach der Methode der infinitesimalen Zeitschritte durchgeführt. Zur Berechnung der Zeitmomente wurde schließlich eine zweidimensionale Erweiterung des THERMOS-Codes verwendet.

Literaturverzeichnis

- ⟨1̄⟩ Seminar on Intense Neutron Sources Conf.-6600925 Santa Fé  
New Mexico, Sept. 19-23 1966
- ⟨2̄⟩ Fast Burst Reactors Albuquerque Conf.-690102, Jan. 23-30  
1969
- ⟨3̄⟩ A. Michandon: Journal of Nuclear Energy Vol.17  
165-186, 1963
- ⟨4̄⟩ T. Asaka, J.A. Larrimore: Journal of Nuclear Energy  
Vol.24, 439-72, 1970
- ⟨5̄⟩ K.H. Beckurts, K. Wirtz: Neutron Physics, Springer Verlag  
1964
- ⟨6̄⟩ D.H. Day, R.N. Sinclair: Nuclear Instruments and Methods  
72, 237-53, 1969
- ⟨7̄⟩ I. Butterworth, P. Egelstaff, H. London, F.J. Webb:  
Phil. Mag. 2, 917, 1957
- ⟨8̄⟩ A.W. McReynolds, W.L. Whitemore: IAEA Proceedings 421  
1961, Wien
- ⟨9̄⟩ R.G. Fluharty, F.B. Simpson, G.J. Russell, J.H. Menzel:  
Nucl. Sci. and Eng. 35, 45-69, 1969)
- ⟨10̄⟩ K.F. Graham, J.M. Carpenter: Nuclear Instr. and Methods  
85, 163-171, 1970
- ⟨11̄⟩ B. Arcipiani, G. Fraysse, S. Menardi, G. Riccobono:  
Energia Nucleare Vol.14, No.3, p. 151-160, 1967
- ⟨12̄⟩ G. Riccobono, G. Freysse, S. Menardi:  
Energia Nucleare Vol.15, No.11, 717-721, 1968

- ⟨137⟩ J. Schwinger, E. Teller: Phys. Rev. 52, 286, 1937
- ⟨147⟩ K.H. Beckurts, H.G. Eckert, M. Küchle, K. Scharmer,  
H. Würz: KFK-Bericht Nr. 1532, 1972
- ⟨157⟩ P. Egelstaff, P. Schoffield: Nucl. Sci. and Eng. 12,  
260, 1962
- ⟨167⟩ W. Reichardt: Dissertation Technische Hochschule  
Karlsruhe, 1966
- ⟨177⟩ G. Sarma: IAEA Proceedings 397, 1961, Wien
- ⟨187⟩ J.A. Young, J. U. Koppel: Phys. Rev. 135 No. 3A, 603  
1964
- ⟨197⟩ R.B. Sutton et al.: Phys. Rev. 72, 1147, 1947
- ⟨207⟩ W. Schott: Dissertation Technische Hochschule München  
1968
- ⟨217⟩ I. Gurevich, L.V. Tarasov: Low Energy Physics North  
Holland Publishing Company Amsterdam, 1968
- ⟨227⟩ van Hove: Phys. Rev. 95, 249, 1954
- ⟨237⟩ G.H. Vineyard: Phys. Rev. 110, 999, 1958
- ⟨247⟩ R. McLatchine: Programmbeschreibung LEAP, AERE Harwell  
1962
- ⟨257⟩ G.C. Wick: Phys. Rev. 94, 1228, 1954
- ⟨267⟩ Y.D. Naliboff: GA-5652, 1964
- ⟨277⟩ R.J. Elliot, W.M. Hartmann: Proc. Phys. Soc. 90, 671  
1967

- ⟨28⟩ P. Egelstaff, B. Haywood, F. Webb: Proc. Phys. Soc. 90, 681, 1967
- ⟨29⟩ P. Egelstaff: Advances in Physics 11, 203, 1962
- ⟨30⟩ W.D. Seifert: Eur.Report 4455 d, 1970
- ⟨31⟩ H. Honeck: THERMOS-Code for Reactor Lattice Calculation BNL 5826, 1961
- ⟨32⟩ M.M.R. Williams: The Slowing Down and Thermalization of Neutrons North-Holland Publishing Company Amsterdam 1966
- ⟨33⟩ E. Barnard, N.A. Khan, M.J. Poole, J.H. Taid, R.C.F. McLatchie: BNL-719 (C-32), Bd. III, 1962
- ⟨34⟩ M.J. Ohanian, P.B. Daitch: Nucl. Sci. and Eng. 19, 343, 1964
- ⟨35⟩ A.E. Profio et al.: Pulsed Neutron Research IAEA Conf. Vol.I, 123, 1965
- ⟨36⟩ L. Collatz: Funktionalanalysis und numerische Mathematik Springer Verlag Berlin-Göttingen-Heidelberg, 1964
- ⟨37⟩ W. Eyrich, A. Schmidt: KFK-Bericht Nr. 304, 1965
- ⟨38⟩ R.B. Scott, F.G. Brickwedde, H.C. Urey, M.H. Wohl: J. Chem. Phys. 2 454, 1934
- ⟨39⟩ A. Farkas: Orthohydrogen, Parahydrogen Heavy Hydrogen Cambridge University Press London, 1955
- ⟨40⟩ B.T. Matthias, C.J. Gorter (Ed): Progress in Low Temperature Physics, Interscience Publishers North Holland Publishing Company Amsterdam Vol.2, 1957

- [/41/] A.T. Stewart, G.L. Squires: Journal of Scientific Instruments Vol. 32, 26, 1955
- [/42/] A. Eucken: Lehrbuch der chemischen Physik Bd. 1
- [/43/] F.J. Webb: Journal of Nucl. Energy Parts A/B 17, 187, 1963
- [/44/] BNL 325 D.J. Hughes, R.B. Schwertz: Neutron Cross Sections
- [/45/] K.H. Beckurts: Habilitationsschrift Technische Hochschule Karlsruhe 1960
- [/46/] H. Würz: Nukleonik Bd. 11, 270, 1968
- [/47/] R. Kladnik, I. Kuscer: Nucl. Sci. and Eng. Vol.13, No.2, 1962
- [/48/] J.M. Kallfelz: Dissertation Technische Hochschule Karlsruhe 1966
- [/49/] B.C. Haywood, I.M. Thorson: BNL 719, Vol.1, 26, 1962
- [/50/] W.G. Bickley, J. Nayler: Phil. Mag. 20, 343, 1935
- [/51/] Blackman: Handbuch der Physik, Bd. VII/1, Springer Verlag 1956
- [/52/] R.W. Hill, O.V. Lounasmaa: Phil Mag. 4, 785, 1959

A N H A N G

A 1 Auflösungskorrektur zur Bestimmung der Zeitmomente

Durch die endliche Chopperöffnungszeit wird die vom Zeitpunkt der Chopperöffnung an gemessene Flugzeit T unsicher. Eine weitere Unsicherheit in der gemessenen Flugzeit T ergibt sich aus der endlichen Breite der zur Zeitmessung verwendeten Zeitkanäle. Die endliche Chopperöffnung bewirkt aber auch eine zeitliche Mittelung der zeitabhängigen Form des Neutronenspektrums. Beide Effekte lassen sich durch ein doppeltes Faltungsintegral darstellen:

$$\tilde{Z}(T, t) = \int_{-\infty}^{\infty} F(t-t') dt' \int_{-\infty}^{\infty} R(u) \phi(T-u, t') du \quad \text{All siehe Gl. IV.6}$$

Da beide Faltungen auf verschiedene Variablen wirken, können sie unabhängig voneinander ausgeführt werden. Mit der Definition

$$Z_1(T, t) = \int_{-\infty}^{\infty} R(u) \phi(T-u, t) du \quad \text{erhält man aus All:}$$

$$\tilde{Z}(T, t) = \int_{-\infty}^{\infty} F(t-t') Z_1(T, t') dt'$$

1) Bestimmung von  $Z_1(T, t)$ :

Die Auflösungsfunktion  $R(u)$  setzt sich aus einer Rechteckfunktion der Zeitbreite  $\Delta t_1$  ( $\Delta t_1 =$  Breite des Zeitkanals) und aus einer Funktion zusammen, deren Breite für  $t \ll 2\Delta$   $t$ -abhängig ist und deren Verlauf als Funktion von  $u$  durch  $F(u)$  gegeben ist. Die gesamte Halbwertsbreite beider Auflösungsfunktionen sei  $t_1$ .

Da  $t_1 \ll T$  kann  $\phi(T, t)$  um  $T-t_1$  in eine Taylorreihe entwickelt werden. Die Entwicklung wird nach dem dritten Glied abgebrochen. Man erhält für  $Z_1(T, t)$ :

$$Z_1(T, t) = \phi(T-t_1, t) + \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} (t_1-u)^2 R(u) \frac{\partial^2 \phi(T-t_1, t)}{\partial T^2} du \quad A12$$

Da  $t_1$  so gewählt wurde, daß:  $t_1 = \int_{-\infty}^{\infty} uR(u)du$  folgt, daß das in  $(t_1-u)$  lineare Glied verschwindet, d.h. durch Transformation der Flugzeit, die von der Mitte der Auflösungsfunktion an gewählt wird, verschwindet das Glied  $\int_{-\infty}^{\infty} (t_1-u)R(u)du$ .

A12 wird in A11 eingesetzt. Man erhält:

$$\tilde{Z}(T, t) = \int_{-\infty}^{\infty} F(t-t') dt' \phi(T-t_1, t') + \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} (t_1-u)^2 R(u) du \int_{-\infty}^{\infty} F(t-t') dt' \frac{\partial^2 \phi(T-t_1, t)}{\partial T^2} \quad A13$$

Näherungsweise gilt:

$$\frac{\partial^2 \tilde{Z}(T, t)}{\partial T^2} \approx \int_{-\infty}^{\infty} F(t-t') dt' \frac{\partial^2 \phi(T, t_1, t)}{\partial T^2} \quad A14$$

Damit erhält man aus A13:

$$Z(T, t) = \tilde{Z}(T, t) - \frac{\partial^2 \tilde{Z}(T, t)}{\partial T^2} \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} (t_1-u)^2 R(u) du = \int_{-\infty}^{\infty} F(t-t') \phi(T-t_1, t') dt \quad A15$$

2) Bestimmung von

$$\Lambda^2(t) = \int_{-\infty}^{\infty} (t_1 - u)^2 R(u) du \quad \text{A16}$$

Eine einfache Abschätzung von  $\Lambda^2(t)$  ergibt sich, wenn man für  $R(u)$  eine Rechteckfunktion mit für  $t \leq 2\Delta$   $t$ -abhängiger Breite annimmt. Dies bedeutet eine Abschätzung nach oben. Dann erhält man für  $\Lambda^2(t)$ :

$$\Lambda^2(t) = \begin{cases} \frac{\Delta t_1^2}{3} + \frac{t^2}{3} & t < 2\Delta \\ \frac{\Delta t_1^2}{3} + \frac{\Delta^2}{6} & t \geq 2\Delta \end{cases} \quad \text{A17}$$

und entsprechend für  $t_1(t)$ :

$$t_1(t) = \begin{cases} \frac{\Delta t_1}{2} + \frac{t}{2} & t < 2\Delta \\ \frac{\Delta t_1}{2} + \Delta & t \geq 2\Delta \end{cases} \quad \text{A18}$$

Mit A16 erhält man schließlich aus A15:

$$Z(T, t) = \tilde{Z}(T, t) - \frac{1}{2} \Lambda^2(t) \frac{\partial^2 \tilde{Z}(T, t)}{\partial T^2} = \int_{-\infty}^{\infty} F(t-t') \phi(T-t_1, t') dt' \quad \text{A19}$$

Die gemessenen  $Z(T, t)$ -Werte werden gemäß Gleichung A19 einer Auflösungskorrektur zur Berücksichtigung der Flugzeitunsicherheit unterworfen. Anschließend werden dann die korrigierten Werte  $Z(T, t)$  zur Bestimmung der Zeitmomente ausgewertet.

Die Auflösungskorrektur betrug weniger als 5% und lag damit stets größenordnungsmäßig im Rahmen der statistischen Fehlergrenzen.

A 2 Auflösungskorrektur zur Bestimmung des asymptotischen Spektrums

Zur Ableitung der Beziehung VI.3 für  $t \gg 2\Delta$  (asymptotisches Spektrum) dient Gleichung A11 als Startgleichung.  $R(u)$  ist jetzt identisch mit  $F(u)$  ( $u = t-t'$ ) und gegeben durch die auf 1 normierte Chopperauflösungsfunktion.

Damit erhält man nach Ausführung der Laufzeitauflösungskorrektur:

$$Z(T,t) - \frac{1}{2} \Lambda^2 \frac{\partial^2 Z(T,t)}{\partial T^2} = \int_{-\infty}^{\infty} R(u) du \phi(T-t_1, t-u) \quad \text{A21}$$

Dabei sind  $\Lambda^2$  und  $t_1$  durch die Gleichungen A17 bzw. A18 für  $t \gg 2\Delta$  definiert.

Wenn das Neutronenfeld einen asymptotischen Zustand erreicht hat, ist  $\phi(T,t)$  darstellbar als:

$$\phi(T,t) = \phi_{as}(T) e^{-\alpha t}$$

Damit erhält man aus A21:

$$\phi(T-t_1, t) = Z(T,t) \left[ 1 - \frac{1}{2} \Lambda^2 \frac{\partial^2 Z(T,t)}{\partial T^2} \frac{1}{Z(T,t)} \right] \left( \frac{\alpha \Delta}{1 - e^{-\alpha \Delta}} \right)^2 \quad \text{A22}$$

A 3 Beziehung zwischen  $\phi(T, t)$  und  $Z(T, t)$

Aus der ersten Gleichung VI.5 folgt durch einmalige t-Ableitung:

$$\frac{\partial Z(T, t)}{\partial t} = \int_0^t \phi(T, t') dt' \quad t \leq \Delta \quad A31$$

Aus der zweiten Gleichung VI.5 erhält man durch Ableiten und Einsetzen der Gleichung A31:

$$\begin{aligned} \frac{\partial Z(T, t)}{\partial t} &= - \int_0^{t-\Delta} \phi(T, t') dt' + \int_{t-\Delta}^t \phi(T, t') dt' = \int_0^t \phi(T, t') dt' - 2 \int_0^{t-\Delta} \phi(T, t') dt' \\ &= \int_0^t \phi(T, t') dt' - 2 \left. \frac{\partial Z(T, t)}{\partial t} \right|_{t-\Delta} \quad t \leq 2\Delta \quad A32 \end{aligned}$$

Analog erhält man aus der 3. Gleichung VI.5 durch Ableiten und Einsetzen der Gleichungen A31 und A32

$$\begin{aligned} \frac{\partial Z(T, t)}{\partial t} &= - \int_0^{t-\Delta} \phi(T, t') dt' + \int_{t-\Delta}^t \phi(T, t') dt' = \\ &= \int_0^{t-2\Delta} \phi(T, t') dt' - 2 \int_0^{t-\Delta} \phi(T, t') dt' - 3 \int_0^{t-2\Delta} \phi(T, t') dt' \\ &= \int_0^t \phi(T, t') dt' - 2 \left. \frac{\partial Z(T, t)}{\partial t} \right|_{t-\Delta} - 3 \left. \frac{\partial Z(T, t)}{\partial t} \right|_{t-2\Delta} \quad t > 2\Delta \quad A33 \end{aligned}$$

Durch sukzessives Anwenden von A33 erhält man schließlich:

$$\int_0^X \phi(T, t') dt' = \sum_{v=0}^n (v+1) \left. \frac{\partial z(T, t)}{\partial t} \right|_{t=X-v\Delta} \quad x \leq (n+1)\Delta$$

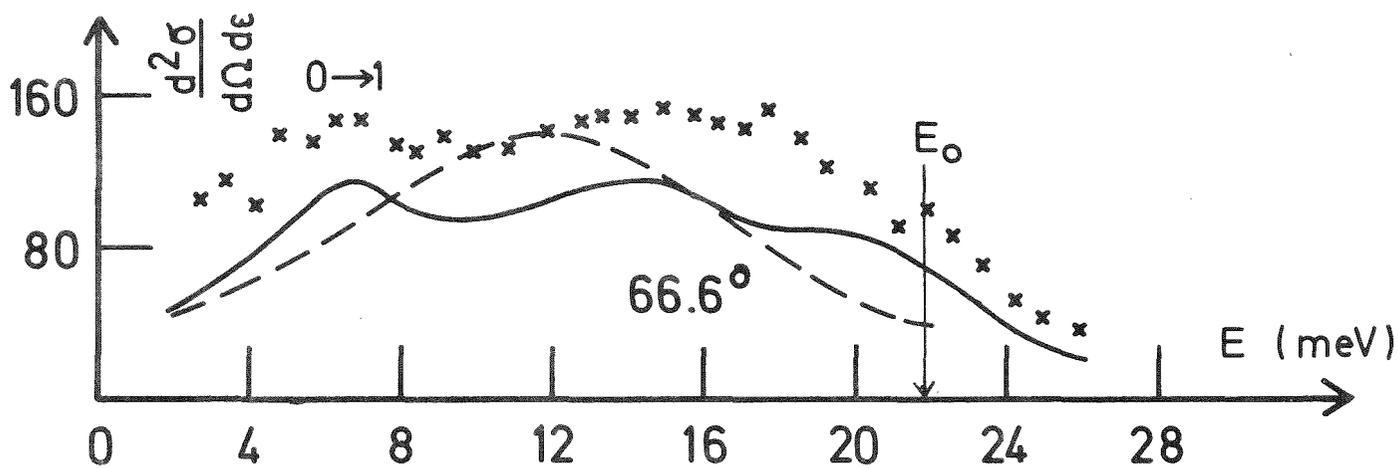
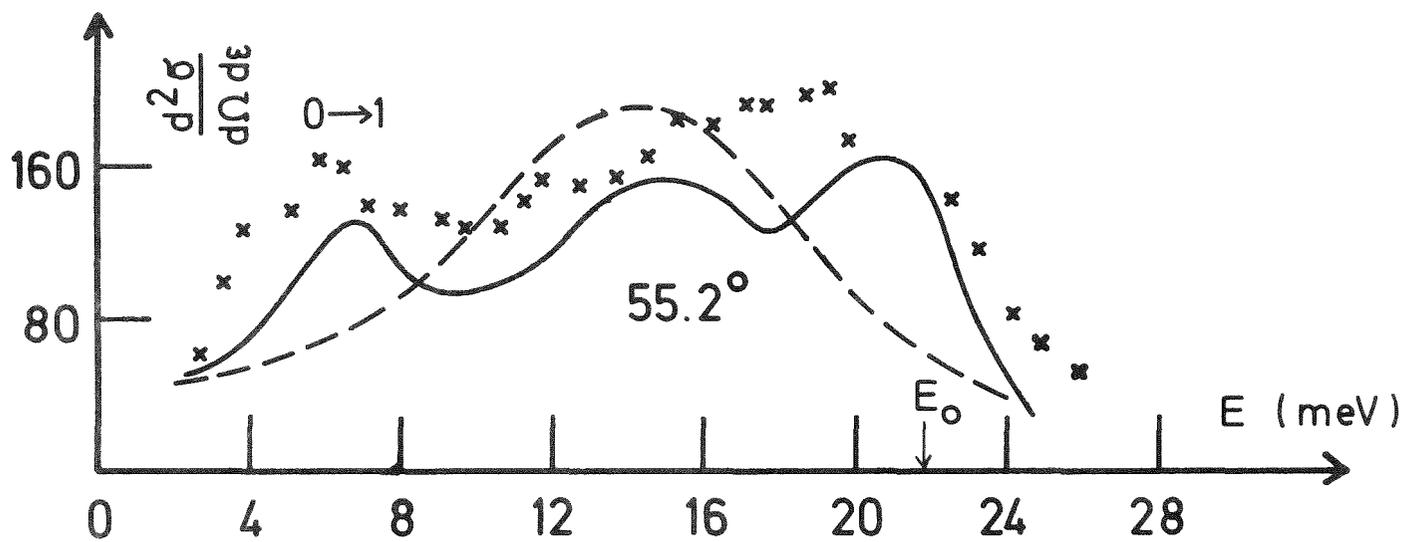
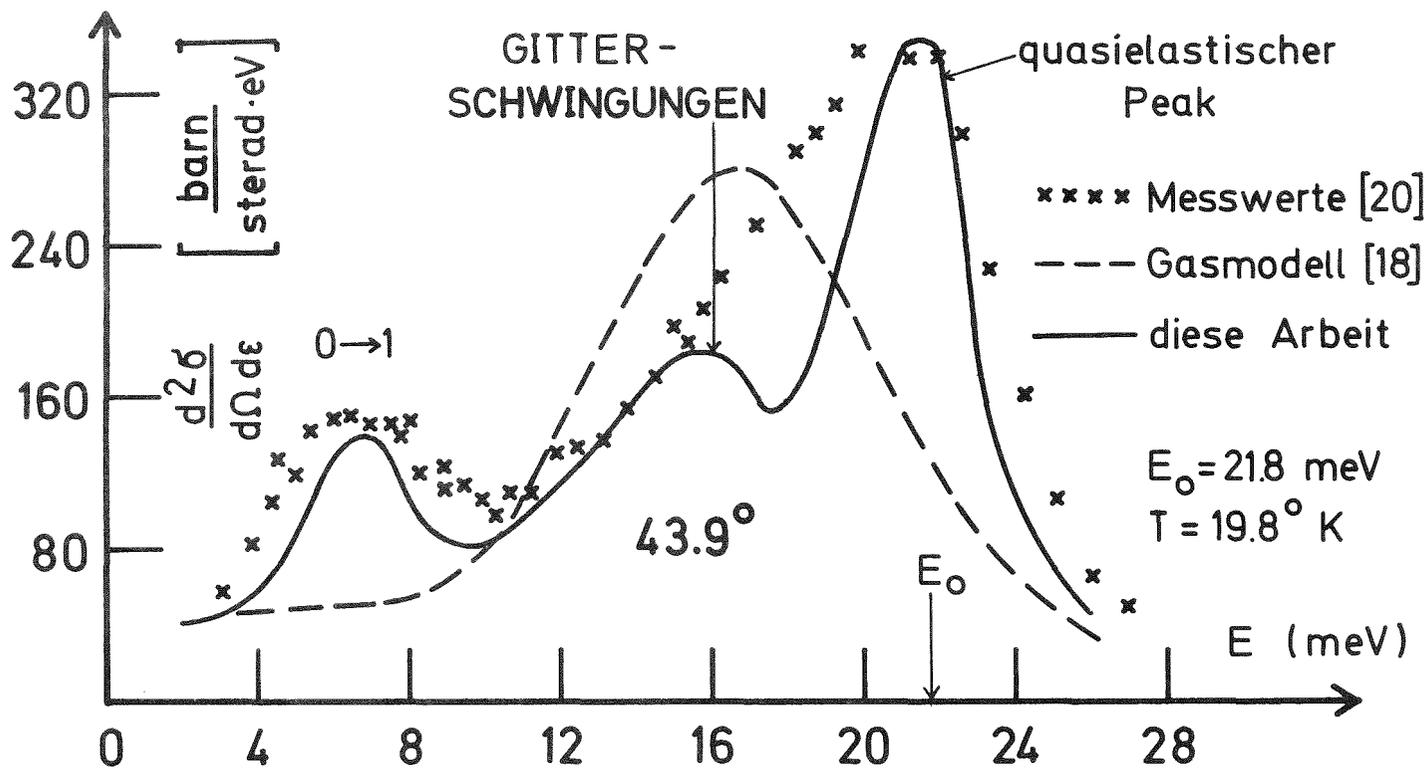


Abb.2 Doppelt-differentieller Streuquerschnitt  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon}$  für flüssigen Wasserstoff der Parakonzentration  $p = 52\%$  und der Temperatur  $T = 19,8^\circ$ K für die Streuwinkel  $43,9^\circ$ ,  $55,2^\circ$ ,  $66,6^\circ$

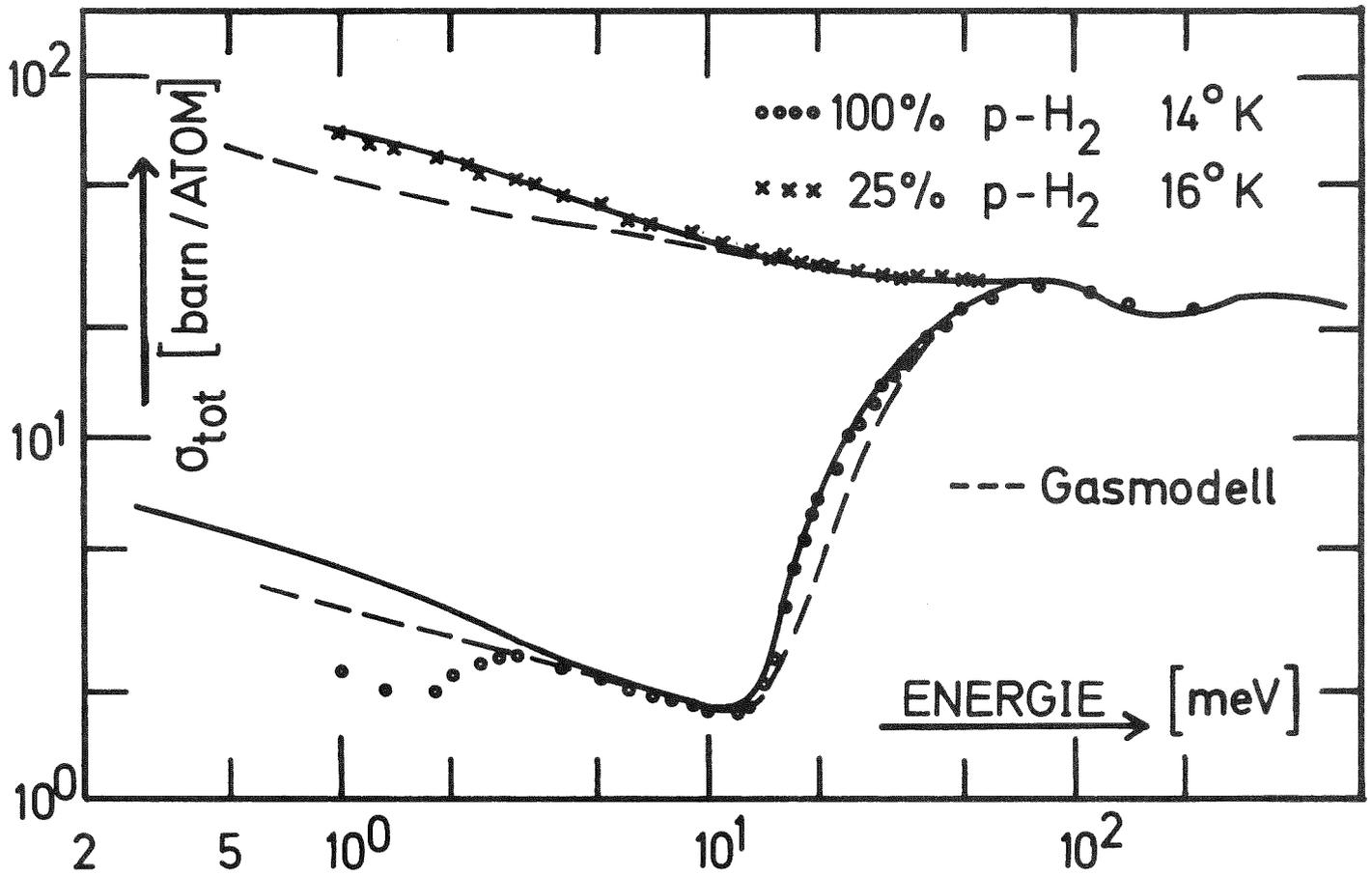


Abb.3 Totale Wirkungsquerschnitte v.flüss.pH<sub>2</sub> b.14°K u.flüss.nH<sub>2</sub> b.16°K

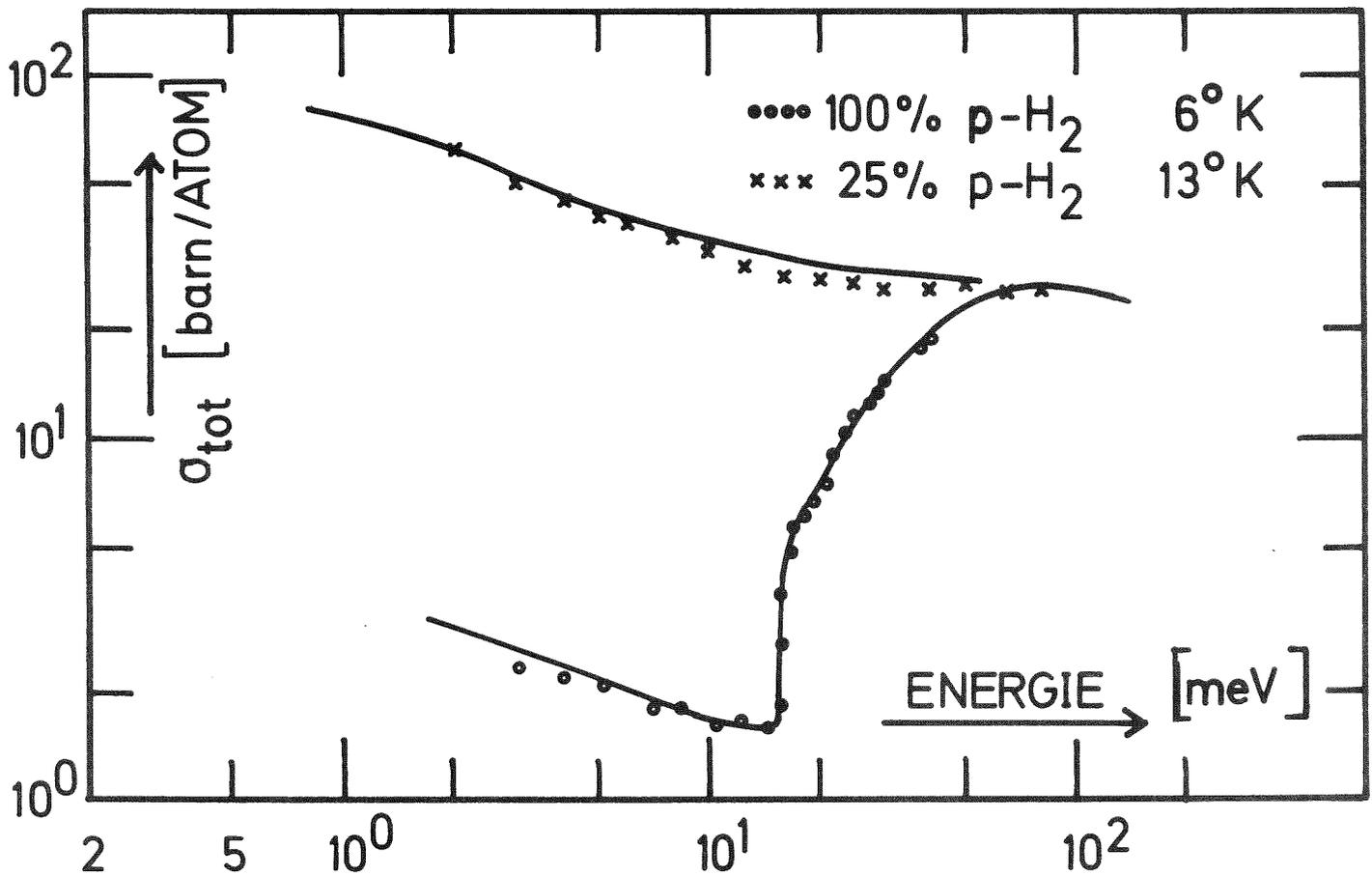


Abb.4 Totale Wirkungsquerschnitte v.festem pH<sub>2</sub> b. 6°K u. festem nH<sub>2</sub> b.13°K

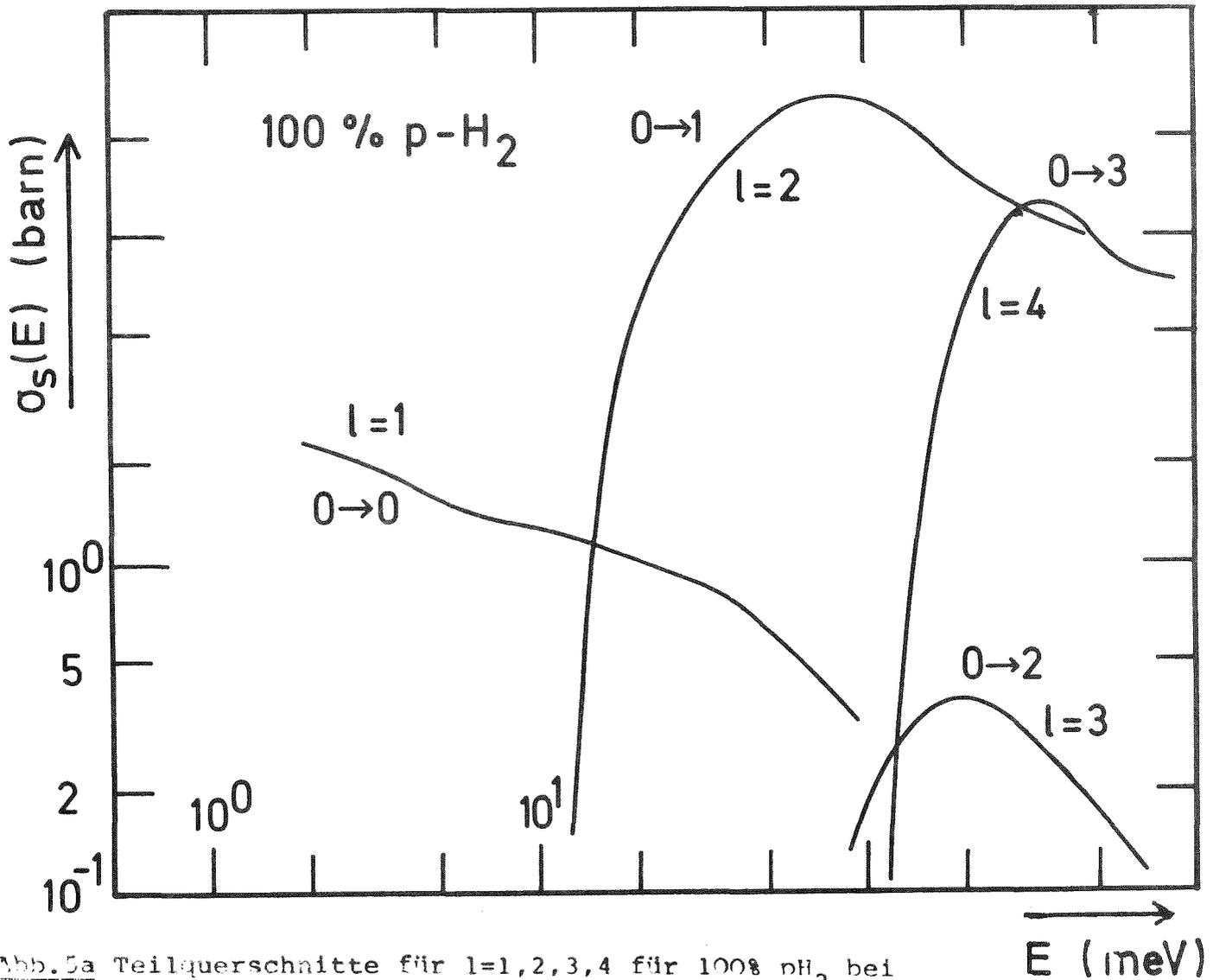


Abb.5a Teilquerschnitte für  $l=1,2,3,4$  für 100% p-H<sub>2</sub> bei  $T = 20,4$  °K

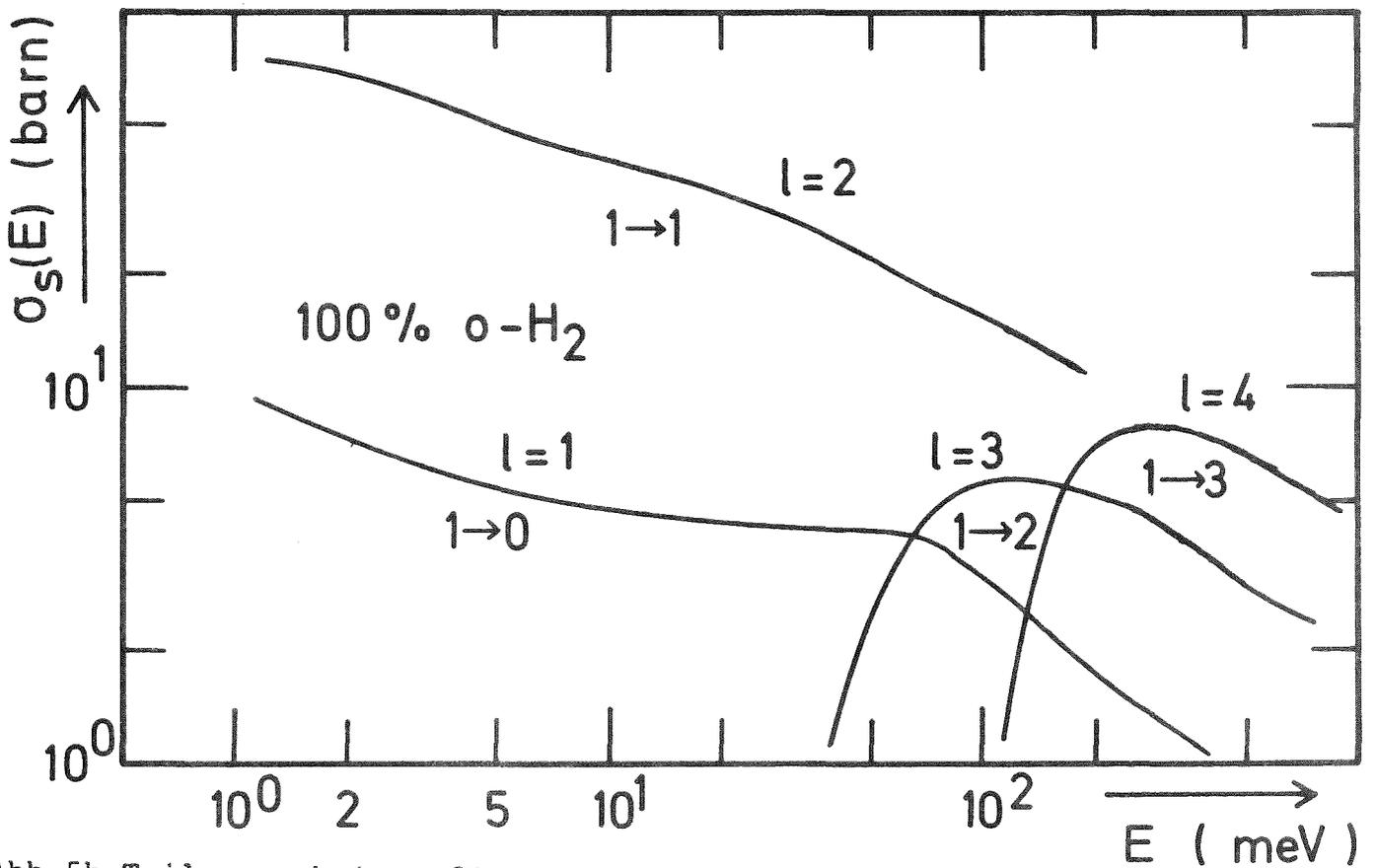


Abb.5b Teilquerschnitte für  $l=1,2,3,4$  für 100% o-H<sub>2</sub> bei  $T = 20,4$  °K  
Die Bezeichnungen  $n \rightarrow m$  geben die Übergänge zwischen Zuständen mit den Rotationsquantenzahlen  $n$  und  $m$  wieder.

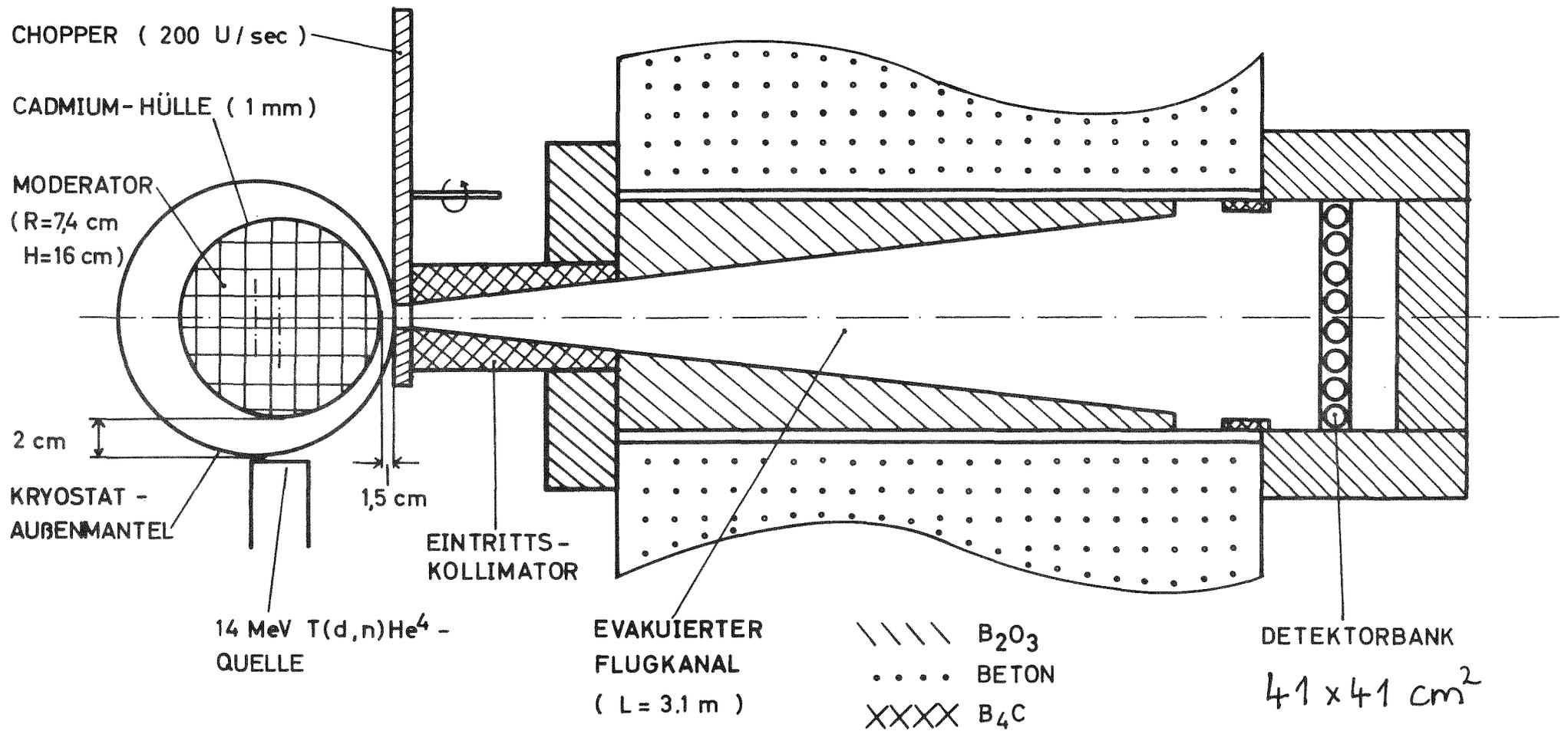


Abb.6 Gesamtansicht der Experimentieranlage zur Bestimmung von Zeitmomenten und asymptotischen Spektren

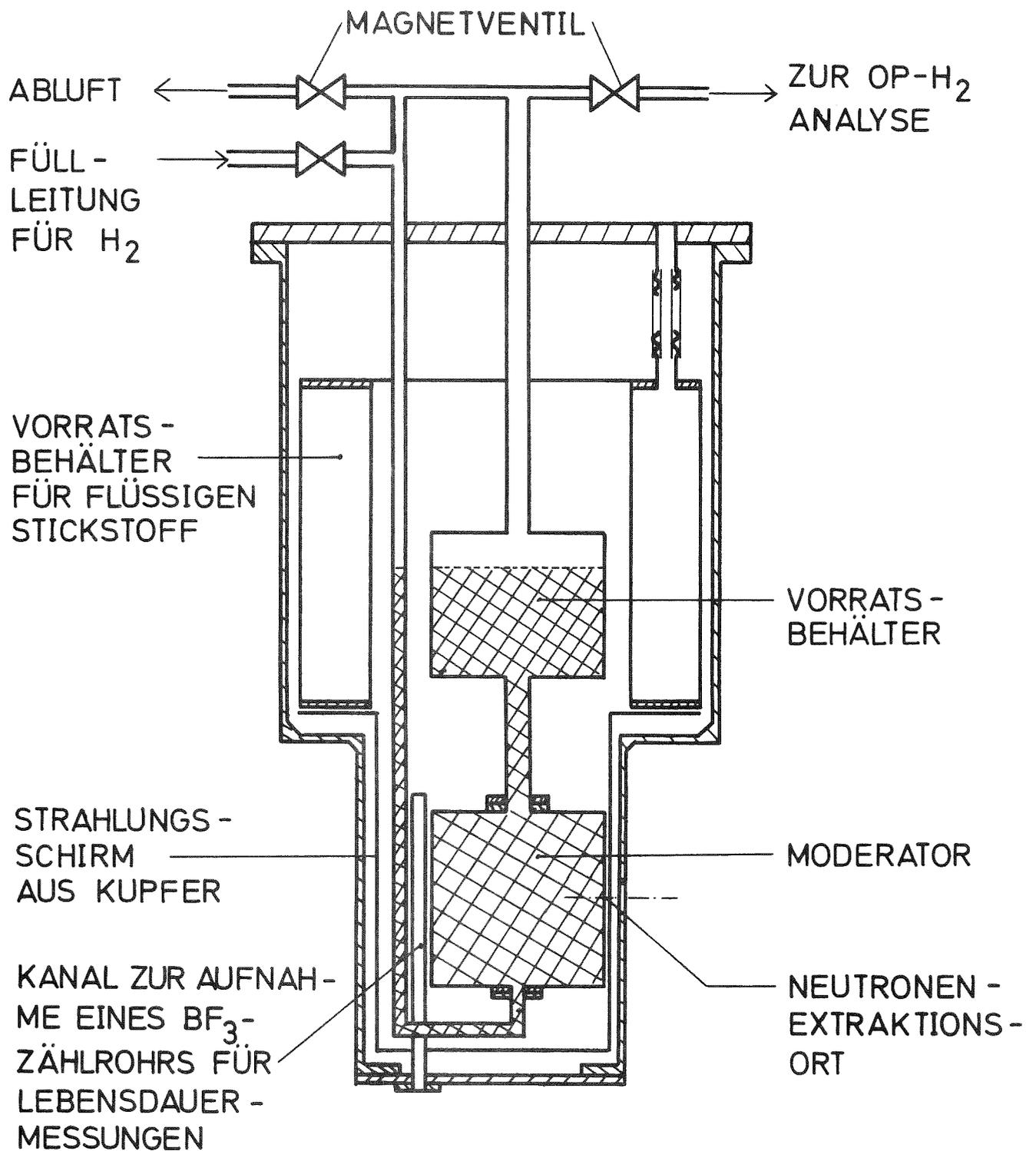
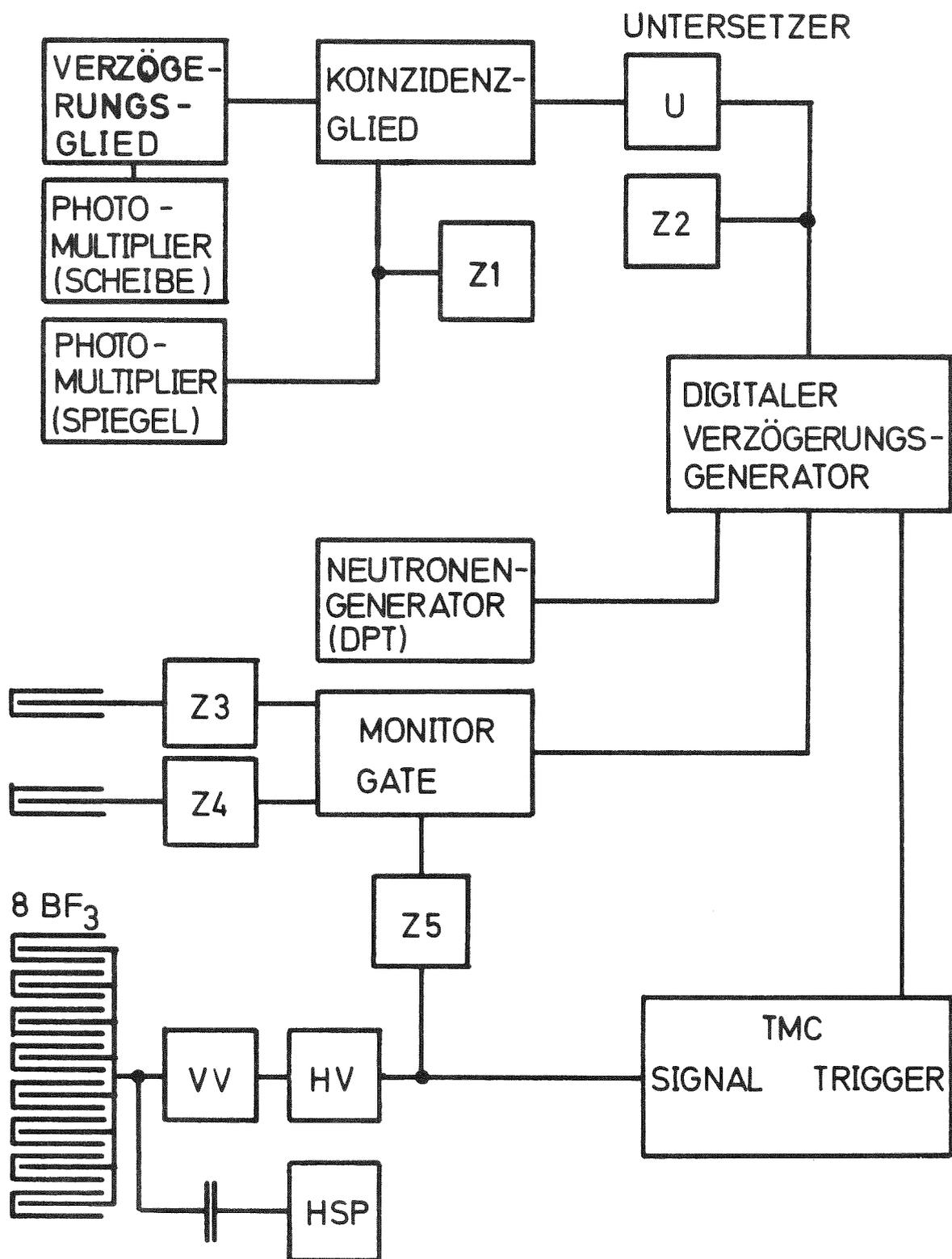


Abb.7 Prinzipskizze des Wasserstoff-Kryostaten



**Abb.8** Blockschaltbild der Flugzeitspektrometer-Meßelektronik zur Messung von Zeitmomenten und asymptotischen Spektren

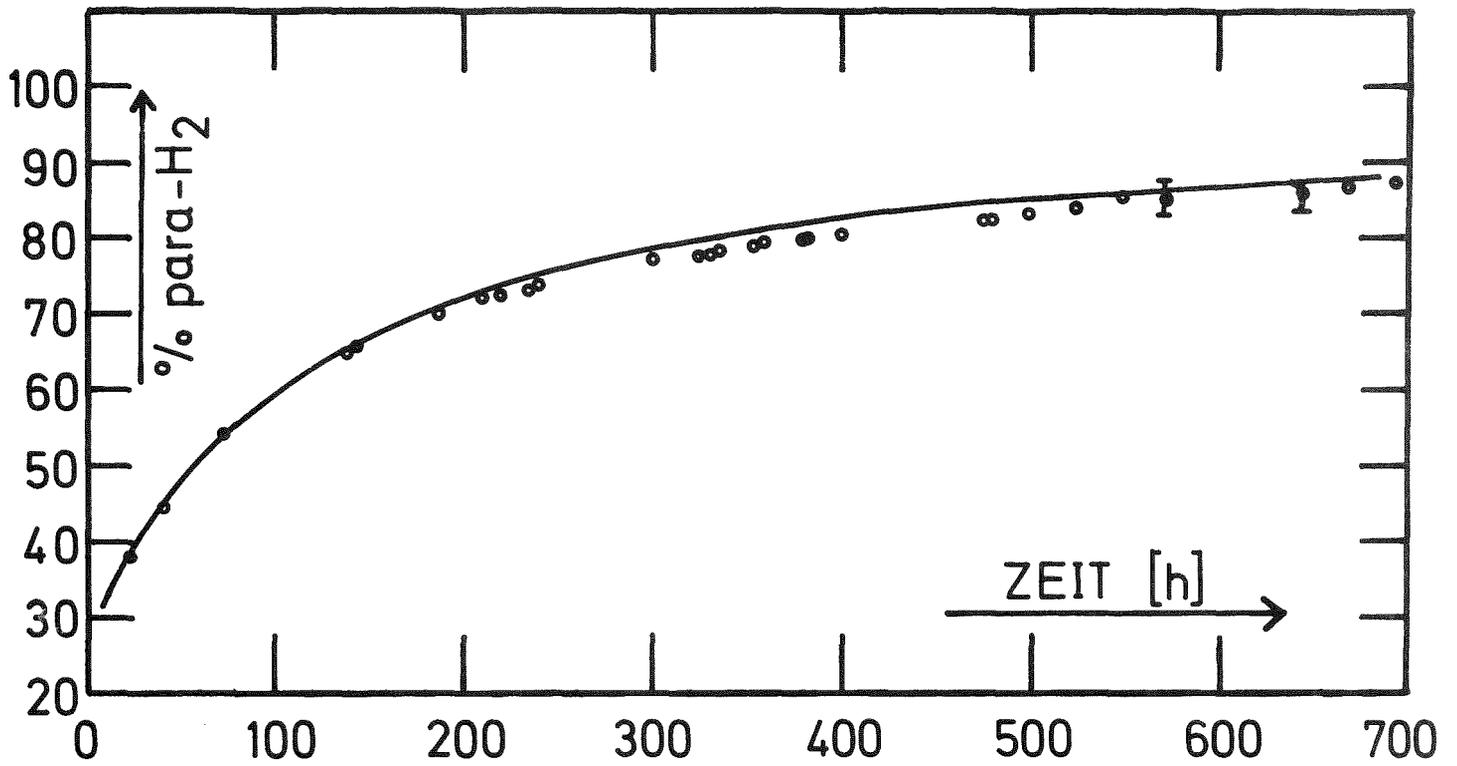


Abb.9 Zeitlicher Verlauf der natürlichen Ortho-Para-Konversion durch Spinwechselwirkung benachbarter Ortho-Moleküle in flüssigem Wasserstoff der Temperatur  $T = 20,4 \text{ }^\circ\text{K}$

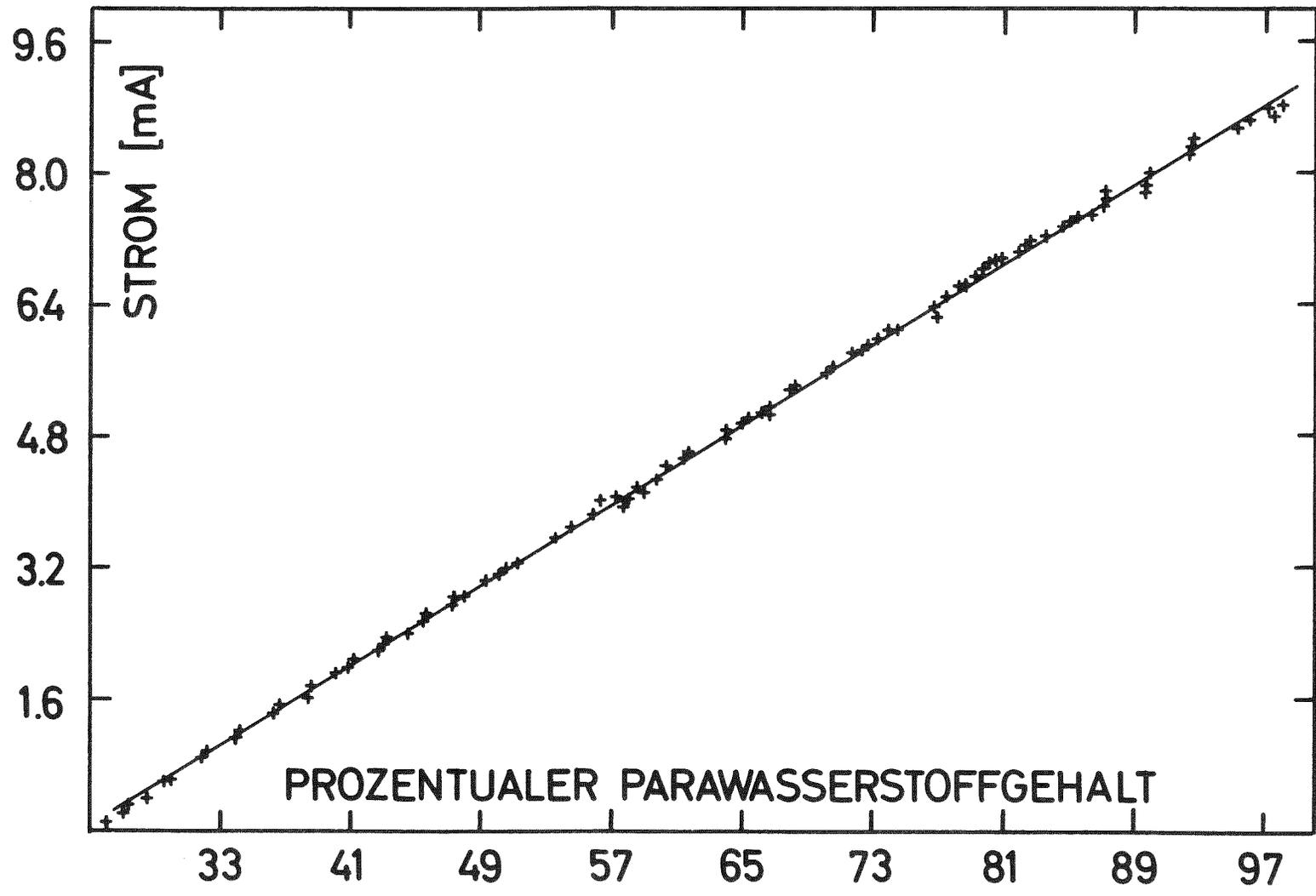


Abb.10 Eichkurve zur Bestimmung der OP-H<sub>2</sub> Konzentration des zu analysierenden Gasgemisches

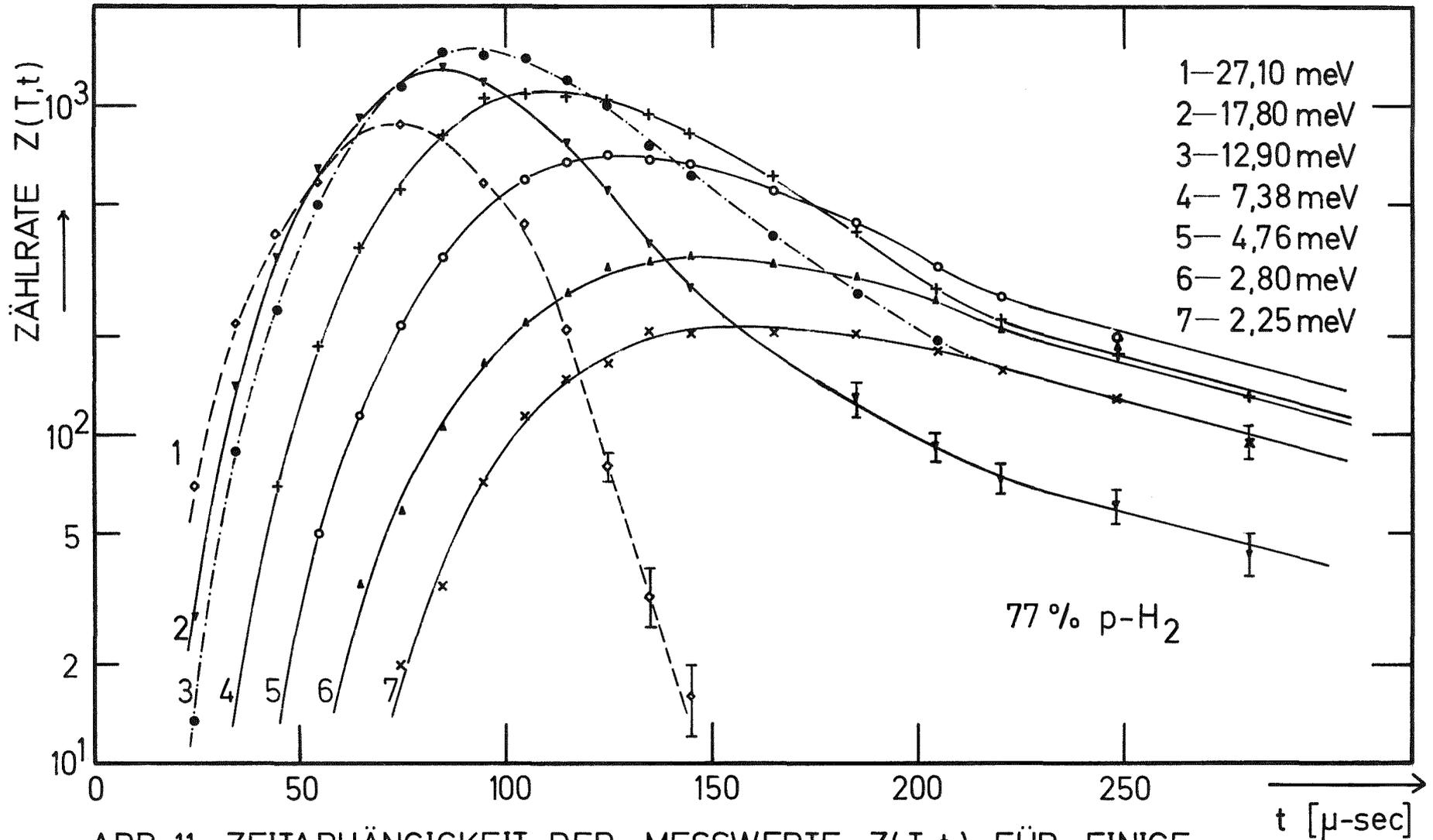


ABB. 11 ZEITABHÄNGIGKEIT DER MESSWERTE  $Z(T,t)$  FÜR EINIGE THERMISCHE ENERGIEGRUPPEN FÜR 77 % p-H<sub>2</sub>-MODERATOR NACH AUSFÜHRUNG DER FLUGZEITAUFBLÖSUNGSKORREKTUR. HALBWERTSBREITE  $\Delta$  DER AUFLÖSUNGSFUNKTION  $F(t-t')$ :  $\Delta = 50,5 \mu\text{s}$

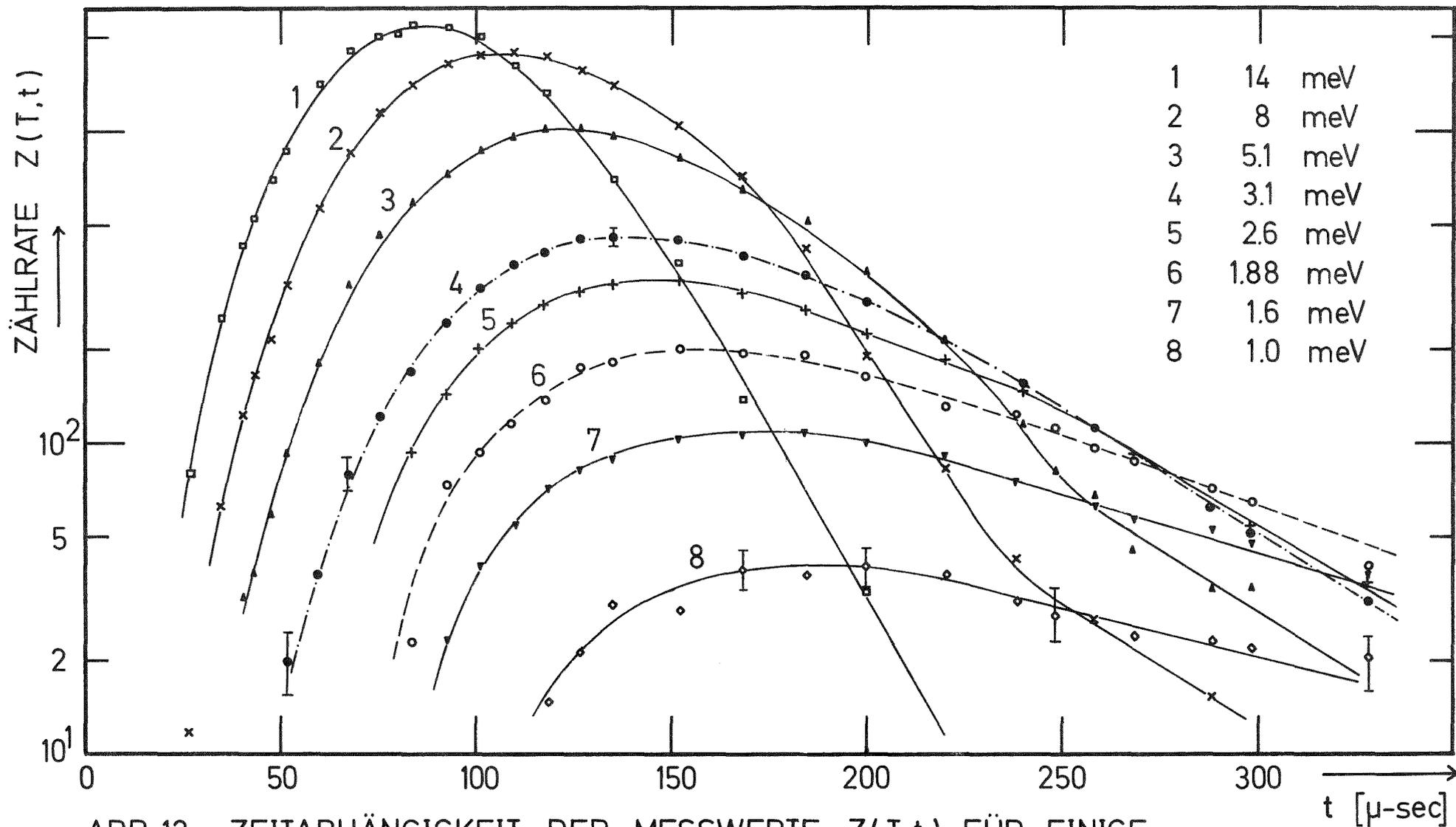


ABB.12 ZEITABHÄNGIGKEIT DER MESSWERTE  $Z(T,t)$  FÜR EINIGE THERMISCHE ENERGIEGRUPPEN FÜR 98% p-H<sub>2</sub>-MODERATOR NACH AUSFÜHRUNG DER FLUGZEITAUFLÖSUNGSKORREKTUR. HALBWERTSBREITE  $\Delta$  DER AUFLÖSUNGSFUNKTION  $F(t-t')$ :  $\Delta=43,6 \mu\text{s}$

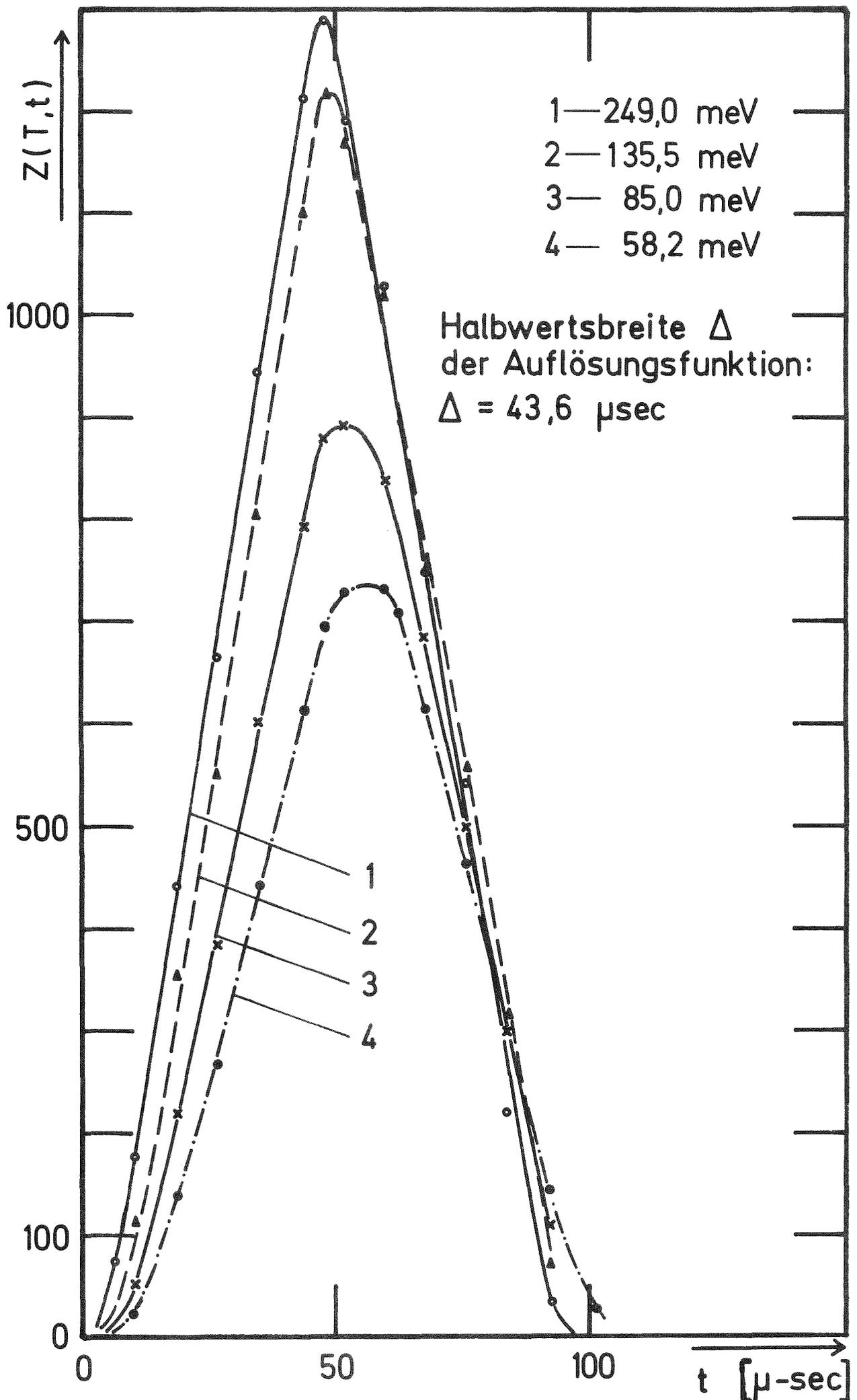
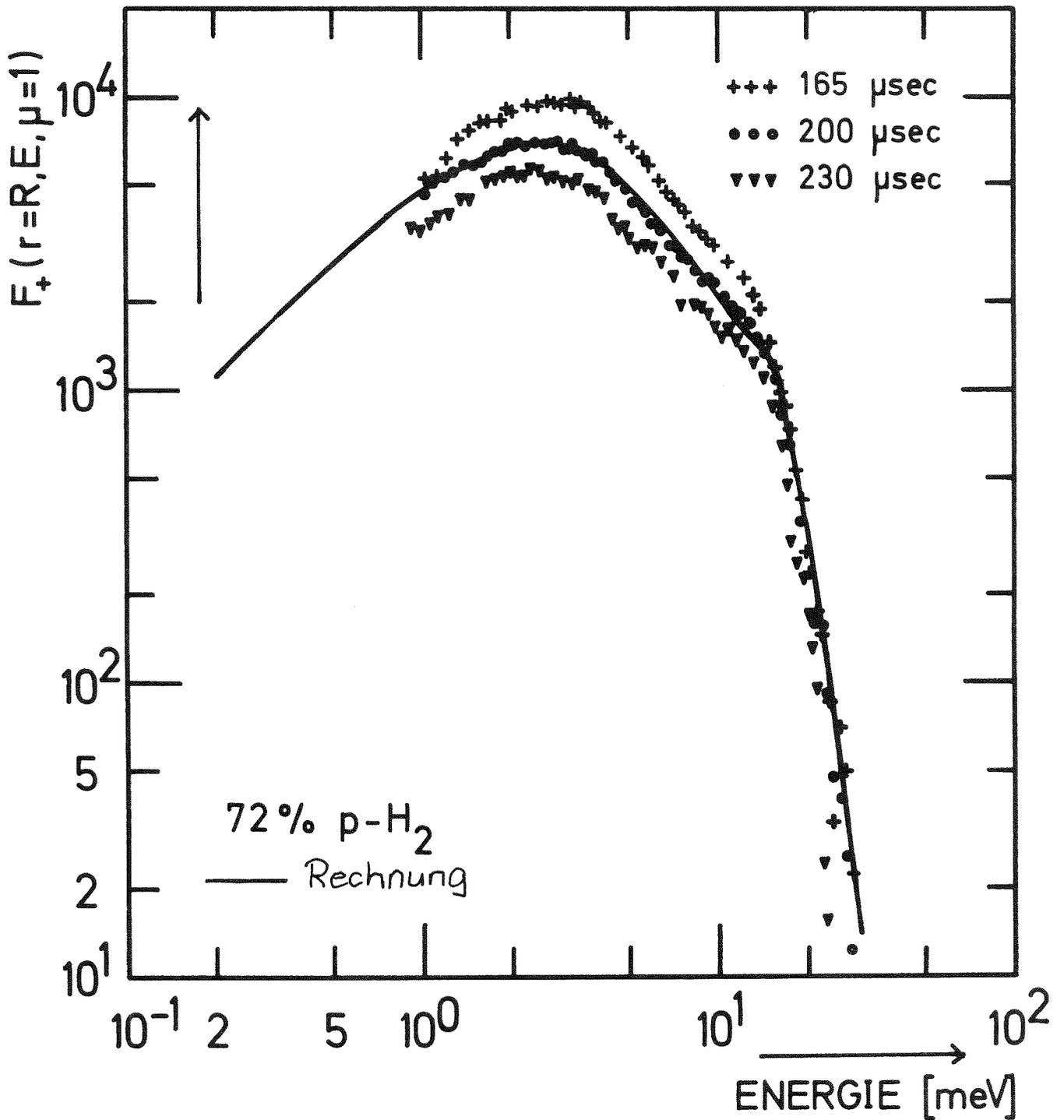


Abb.13 Zeitverlauf der mit der Flugzeitauflösungskorrektur versehenen Meßwerte  $Z(T,t)$  für einige epithermische Energiegruppen für den 98%  $pD_2$ -Moderator



**Abb.14** Asymptotisches senkrechtes Ausflussspektrum für 72% p-H<sub>2</sub> für verschiedene Neutronenverweilzeiten im Moderator  
 Die Punkte geben die Meßwerte, die durchgezogenen Linien die Resultate der Rechnung wieder.

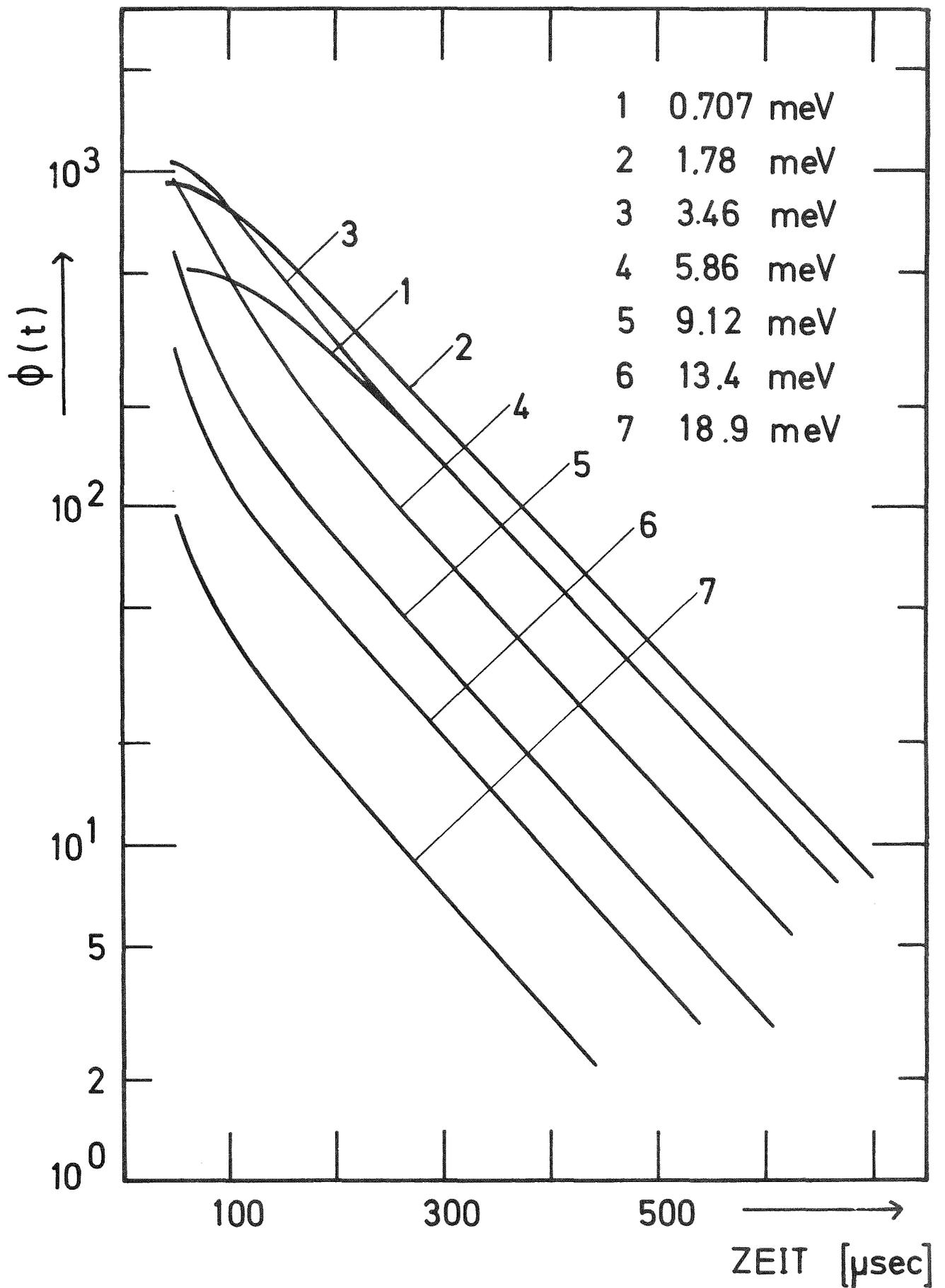


Abb.15 In Diffusionsnäherung berechneter Zeitverlauf einiger thermischer Energiegruppen in einem 77% pD<sub>2</sub>-Moderator

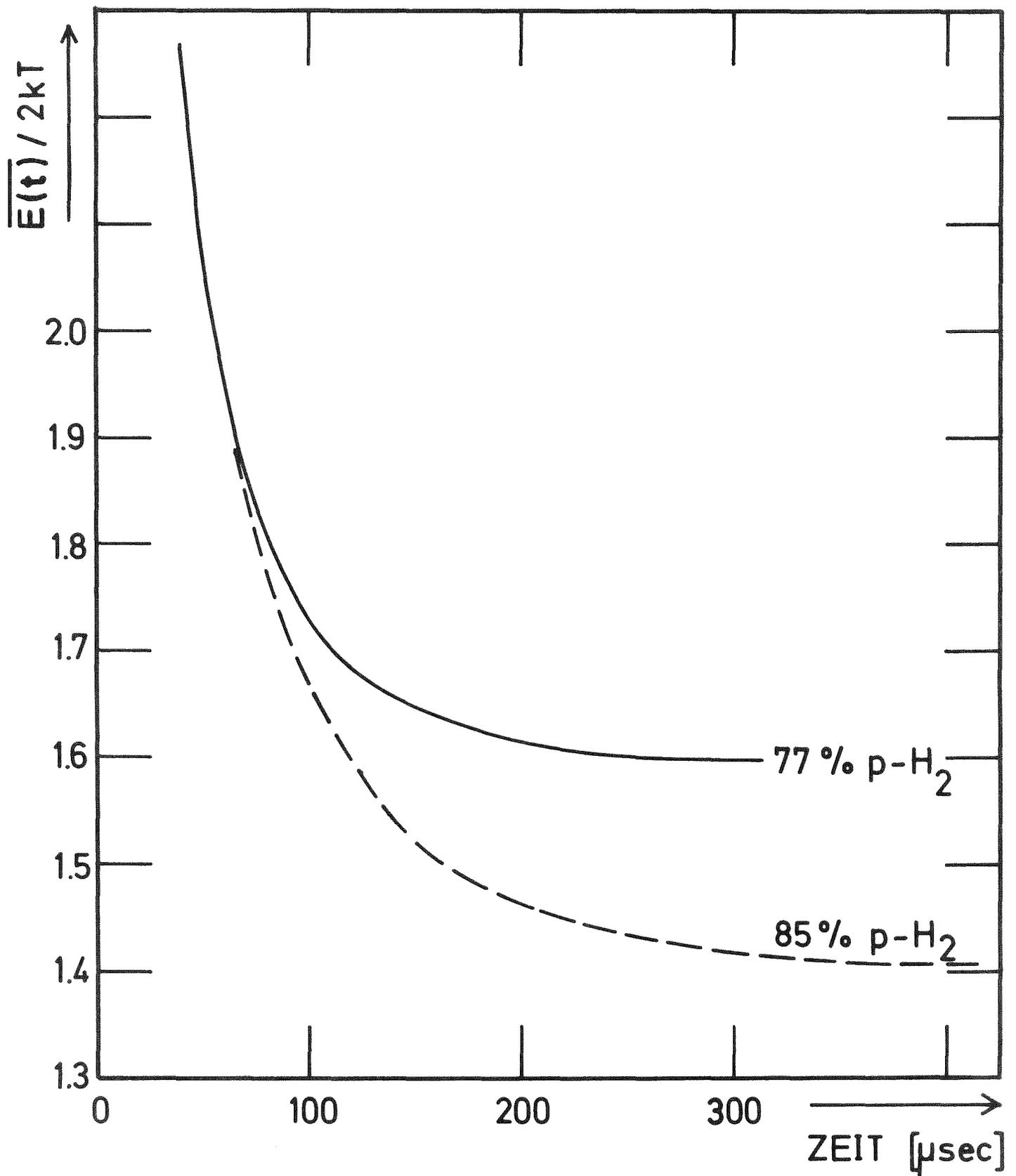


Abb.16 In Diffusionsnäherung berechneter Zeitverlauf der mittleren Energie für einen 77%  $p\text{H}_2$  und einen 85%  $p\text{H}_2$ -Moderator

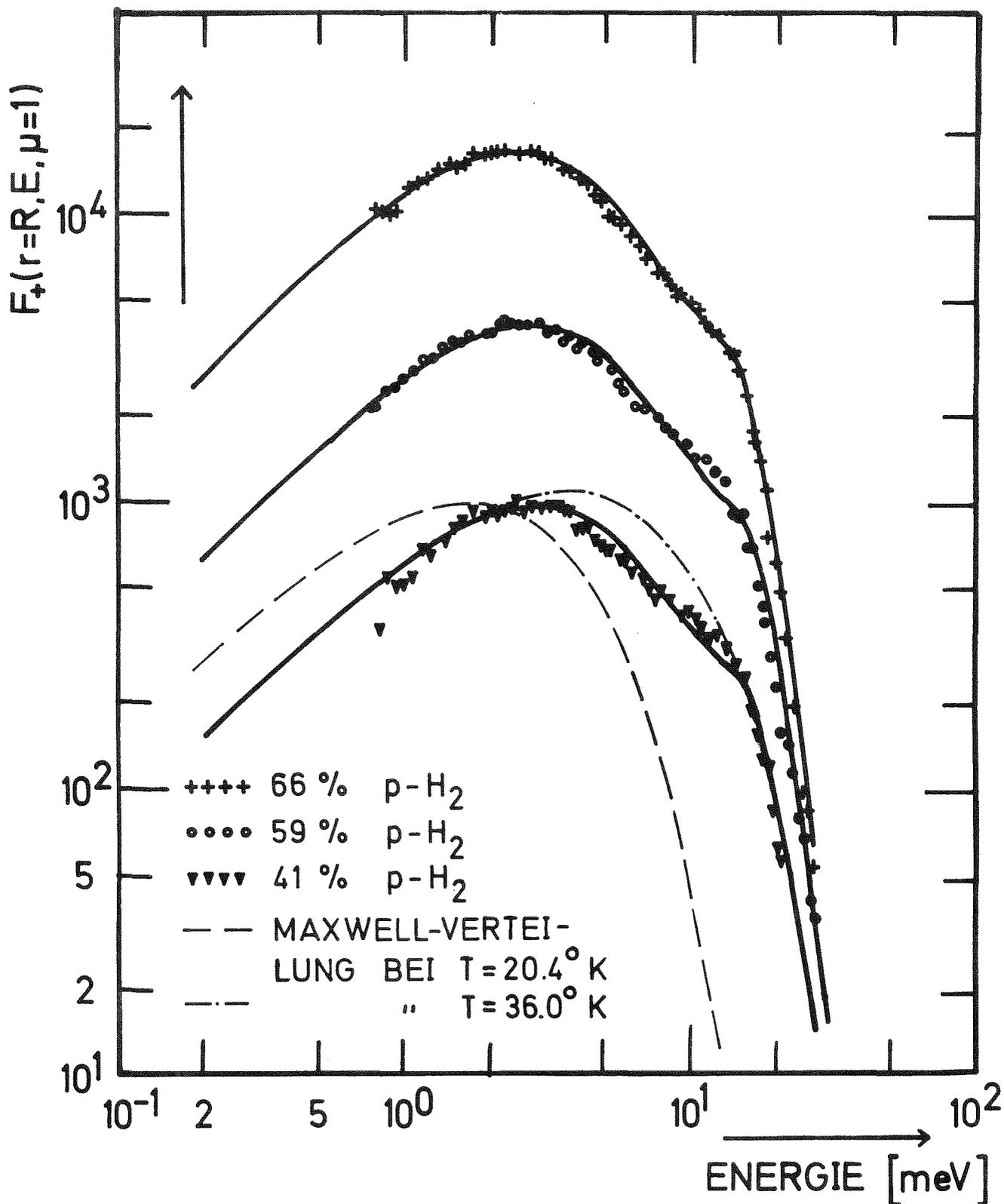


Abb.17 Asymptotische senkrechte Ausflussspektren für verschiedene OP-H<sub>2</sub>-Mischungen. Die Punkte geben die Meßwerte, die durchgezogenen Linien die Resultate der THERMOS-Rechnung wieder.

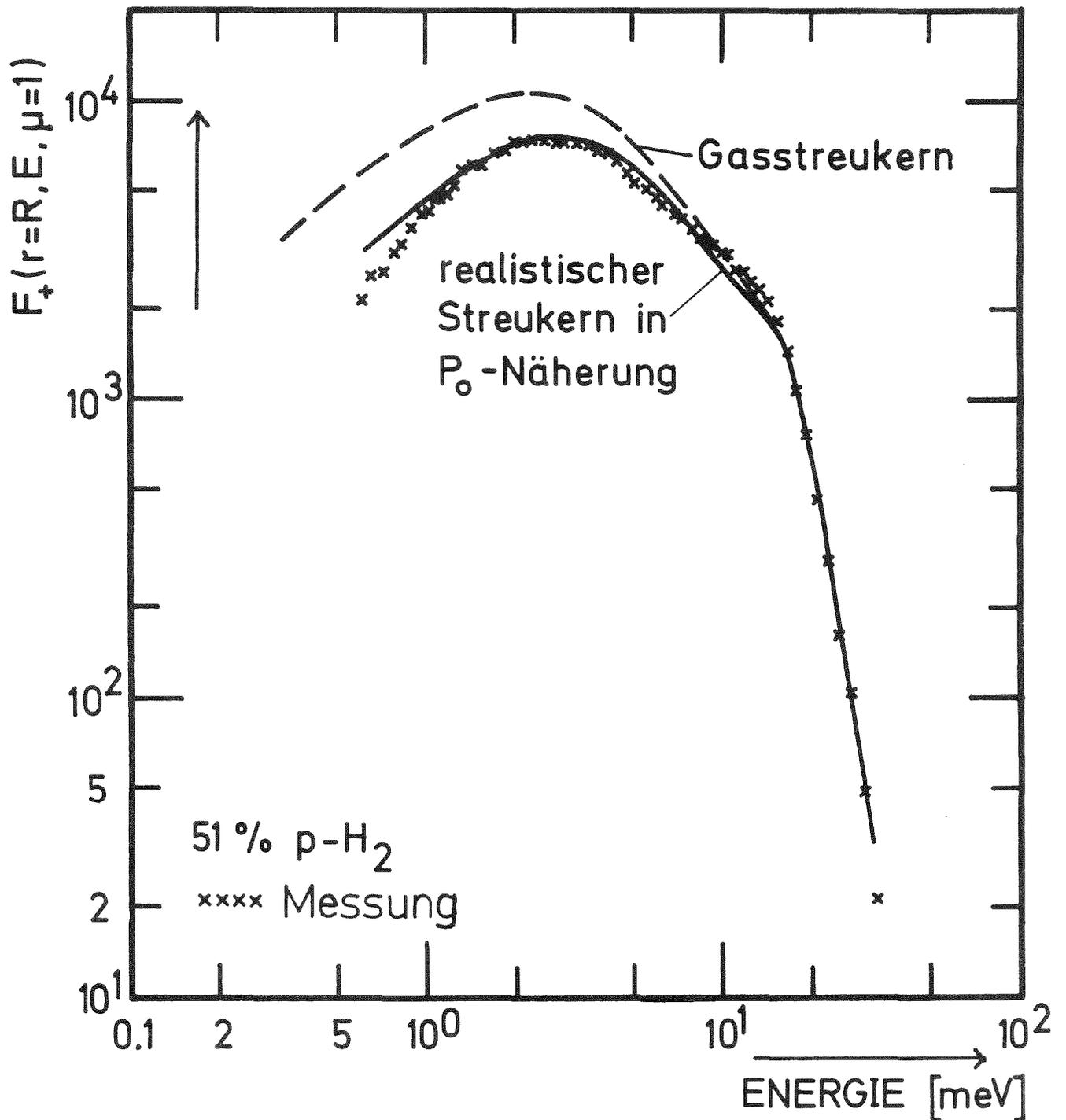


Abb.19 Vergleich eines gemessenen asymptotischen senkrechten Ausflußspektrums mit gerechneten Ausflußspektrern unter Verwendung verschiedener Streukerne  $\Sigma_0(E' \rightarrow E)$

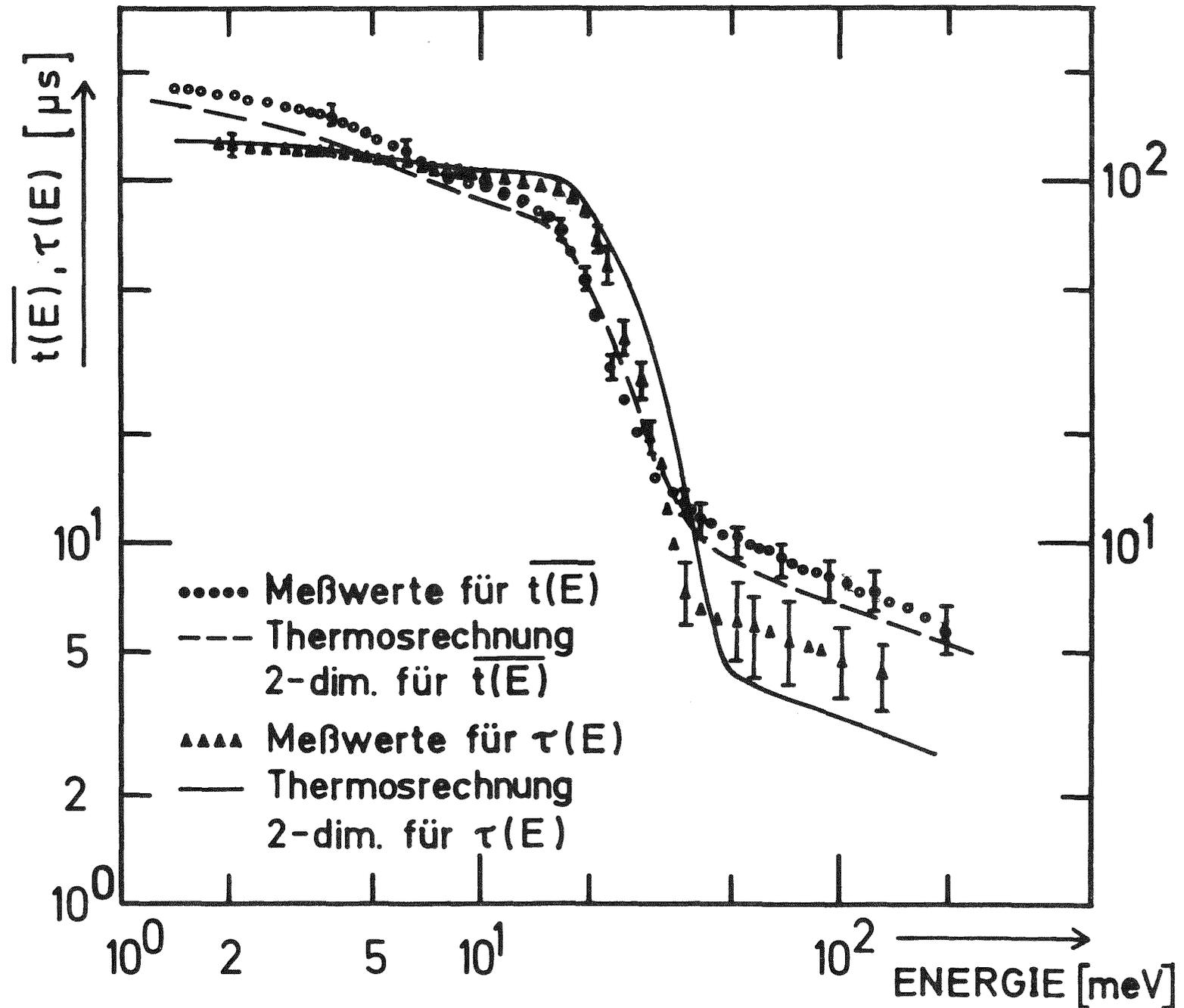


Abb.20 Erstes Zeitmoment  $\overline{t(E)}$  und Varianz  $\tau(E)$  für den 77%  $\text{D}_2\text{O}$ -Moderator

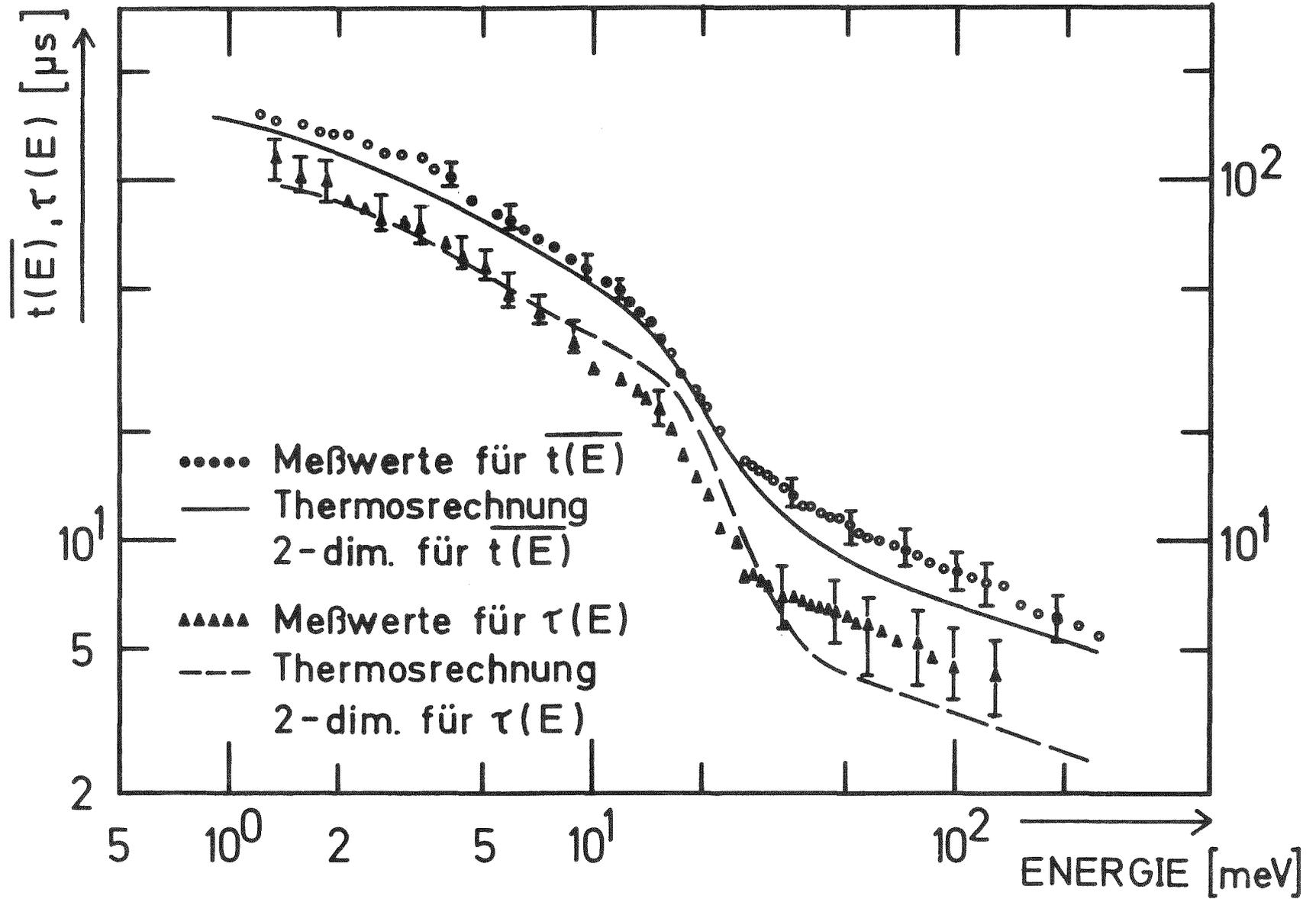
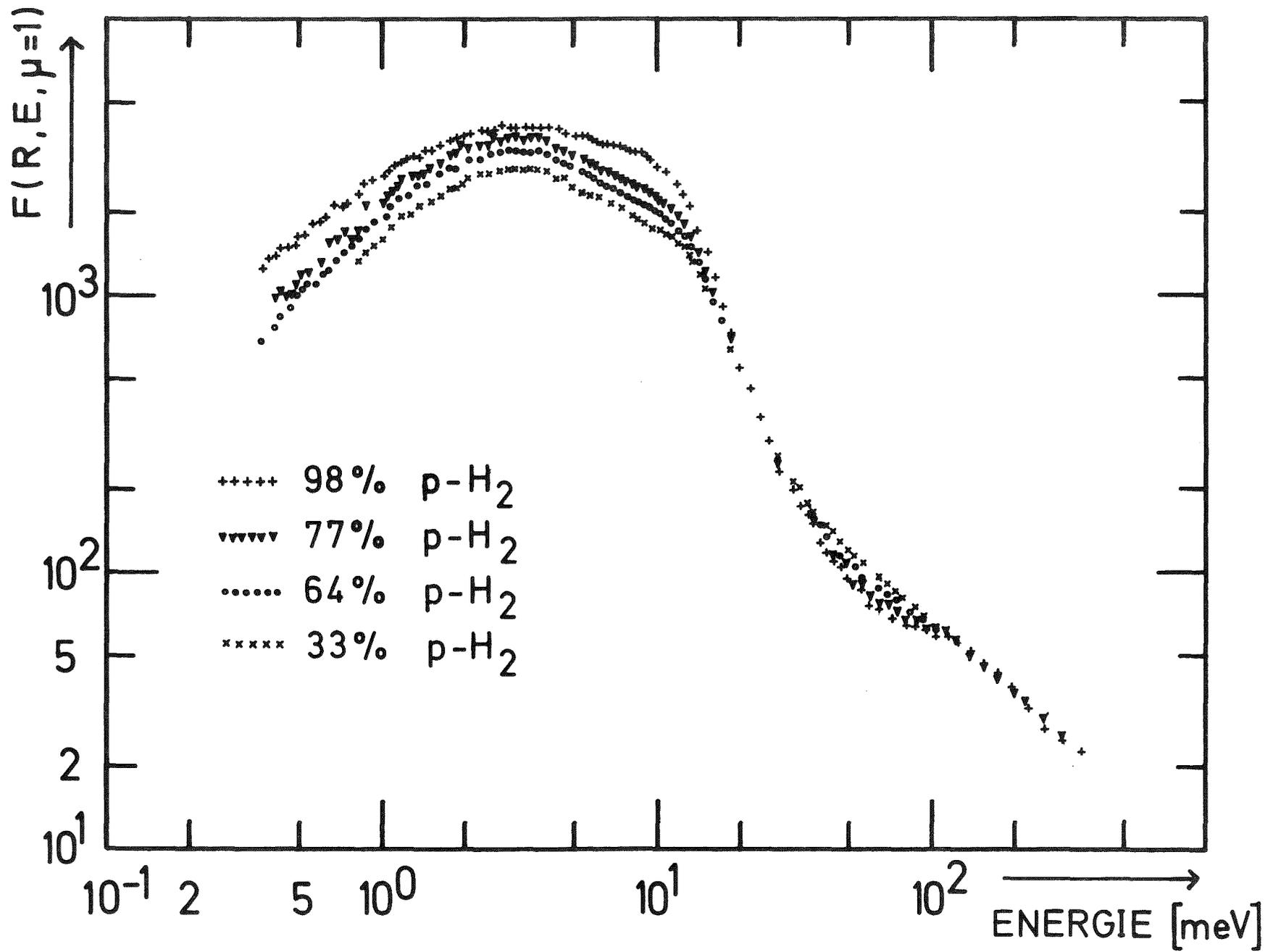


Abb.21 Erstes Zeitmoment  $\overline{t(E)}$  und Varianz  $\tau(E)$  für den 98%  $\text{D}_2$ -Moderator



**Abb.22** Gemessene stationäre senkrechte Ausflussspektren für verschiedene OP-H<sub>2</sub>-Mischungen

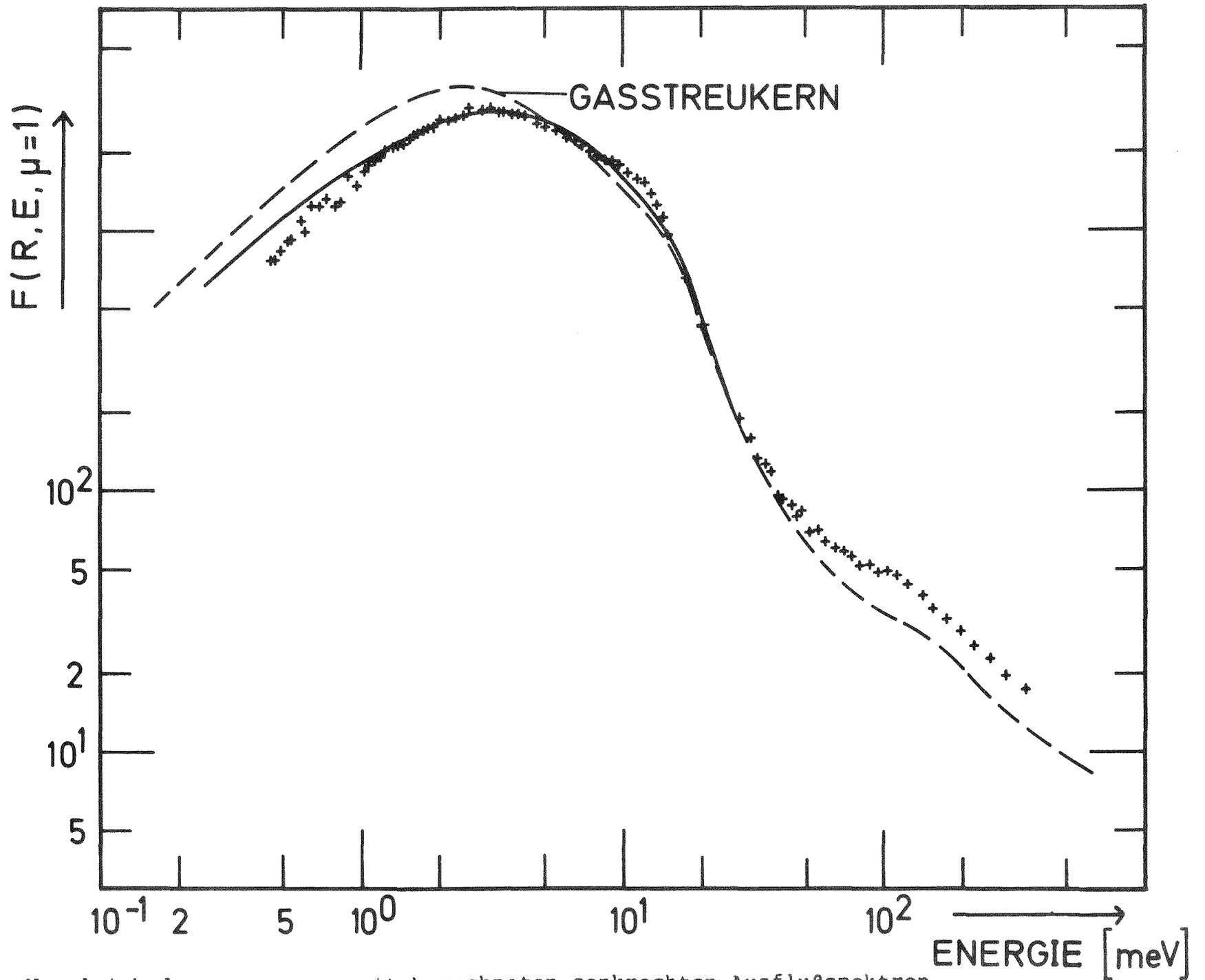


Abb.23 Vergleich des gemessenen mit berechneten senkrechten Ausflussspektren für den 77%  $D_2O$ -Moderator bei Verwendung verschiedener Streukernmodelle