



Mai 1973

KFK 1798

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik Projekt Schneller Brüter

Neutronenspektrumsmessungen in einem abgereicherten Uranmetallblock zur Untersuchung von diskrepanten ^{2 3 8} U-Wirkungsquerschnitten

H. Bluhm



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 1798 Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik Projekt Schneller Brüter

Neutronenspektrumsmessungen in einem abgereicherten Uranmetallblock zur Untersuchung von diskrepanten ²³⁸U-Wirkungsquerschnitten^{*)}

H. Bluhm

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

^{*)} Dissertation, genehmigt von der Fakultät für Maschinenbau der Universität Karlsruhe

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit befaßt sich mit der Messung und Interpretation von Neutronenspektren in einem massiven Block aus abgereichertem Uran.

Im ersten Teil der Arbeit wird die Entwicklung und Erprobung eines γ -diskriminierenden und Energieverlust korrigierenden Halbleitersandwichspektrometers mit ³He für In-Core-Spektrumsmessungen im Energiebereich von 100 keV bis 5 MeV beschrieben. Durch die benutzte Methode der γ -Diskriminierung ist es möglich, den Anwendungsbereich des klassischen ³He-Spektrometers erheblich zu erweitern. Die geometrische Empfindlichkeit des Spektrometers wird sowohl mit Hilfe der Monte Carlo Methode berechnet als auch mit monoenergetischen Neutronen experimentell bestimmt. In einer Reihe von Messungen wird die Zuverlässigkeit des Spektrometers durch Vergleich mit anderen unabhängigen Meßmethoden demonstriert.

Im zweiten Teil der Arbeit werden die auf der Achse eines massiven Uranmetallblocks mit dem beschriebenen ³He- sowie mit kugelförmigen Protonenrückstoßspektrometern gemessenen Neutronenspektren mit berechneten Multigruppenspektren verglichen. Durch systematische Variation aller relevanten Kerndaten wird die Empfindlichkeit der Uranblockspektren gegen ²³⁸U-Wirkungsquerschnittsänderungen ermittelt. Die Empfindlichkeitsuntersuchungen werden sodann zur Ableitung von ²³⁸U-Einfang- und inelastischen Streuquerschnitten aus den Diskrepanzen zwischen theoretischer Vorhersage und Experiment verwendet. Die abgeleiteten ²³⁸U-Querschnitte sind in der Lage, die gemessenen Spektren an sämtlichen Positionen auf der Uranblockachse innerhalb der experimentellen Fehler richtig wiederzugeben. Darüberhinaus führen sie zu erheblich verbesserten Übereinstimmungen zwischen experimentellen und theoretischen Ergebnissen an anderen gegen ²³⁸U-Kerndaten empfindlichen Schnellen Nullenergieanordnungen.

Diese Arbeit wurde an der Universität Karlsruhe als Dissertation genehmigt. Referenten sind Prof. Dr. D. Stegemann und Prof. Dr. K. Wirtz.

Abstract

This report deals with the measurement and interpretation of neutron spectra in a massive block of depleted uranium.

In its first part the construction and test of a ³He-semiconductor-sandwich-spectrometer for in-core spectrum measurements in the energy region from 100 keV to 5 MeV is described which is able to discriminate against γ -background and to correct for energy losses in the target. By the method used for γ -discrimination it is possible to extend considerably the useful energy region of the classical ³He-spectrometer. The geometrical efficiency of the spectrometer is calculated using the Monte Carlo technique, in addition it is determined experimentally with monoenergetic neutrons. In a number of measurements the reliability of the spectrometer is demonstrated by comparison with other independent techniques.

Using the 3 He-spectrometer and spherical proton recoil counters the neutron spectra on the axis of a massive block of uranium metal are measured and compared to calculated multigroup spectra. The sensitivity of the spectra against 238 U cross section changes is determined by systematic variation of all relevant nuclear data. These sensitivity studies are then used to deduce 238 U capture and inelastic scattering cross sections from discrepancies between theoretical prediction and experiment. The 238 U cross sections deduced are able to reproduce the measured spectra at all positions of the uranium block axis within the experimental errors. In addition they lead to a considerably better agreement between experimental and theoretical results for other fast zero power assemblies which are sensitive to 238 U cross section changes.

This work has been accepted as thesis at the University of Karlsruhe. Referees are Prof. Dr. D. Stegemann and Prof. Dr. K. Wirtz.

		Seite
TE	IL I: Entwicklung eines γ-diskriminierenden Halb- leitersandwichspektrometers mit ³ He für In- Core-Spektrumsmessungen im Energiebereich von 100 keV bis 5 MeV	
1)	Bemerkungen zur Verbesserung der Zuverlässigkeit von Neutronenspektrumsmessungen im Energiebereich von 10 keV bis 10 MeV	1
2)	Ein Vergleich von Halbleitersandwichspektrometern mit ⁶ Li und ³ He	2
3)	Konstruktion eines γ-diskriminierenden und Energie- verlust korrigierenden ³ He-Spektrometers	26
4)	Bestimmung der geometrischen Empfindlichkeit des Spektrometers	43
5)	Meßergebnisse und Vergleich mit anderen Meßmethoden	69
TE	IL II: Messung und Interpretation von Neutronen- spektren in einem massiven Uranmetallblock	
1)	Überblick über bisherige Messungen an Uranmetall- Exponential-Experimenten	75
2)	Ausbreitung der Neutronen im Uranblock und daraus resultierende Überlegungen für den Aufbau des Ex-	
	periments	77
3)	Aufbau des Exponentialexperiments vor der ther- mischen Säule des FR2	81
4)	Methoden zur Berechnung der Spektren auf der Uranblockachse	84
5)	Der gegenwärtige Stand der Kenntnis der wich- tigsten ²³⁸ U-Kerndaten, insbesondere von σ _c und σ _{n'}	103

6)	Empfindlichkeit der axialen Neutronenspektren gegen Änderungen der ²³⁸ U-Kerndaten	119
7)	Gemessene Spektren an verschiedenen Orten auf der Uranblockachse; Vergleich zwischen ³ He- und	
	Protonenrückstoßspektren	133
8)	Messung von 235 U-Spaltraten und 238 U-Spalt- und	
	Einfangraten auf der Blockachse und in einem Quer-	
	kanal; örtliche Relaxationslängen und Ratenver-	
	hältnisse	139
9)	Vergleich von gemessenen und gerechneten Spektren	
	und Spektrenverhältnissen sowie Raten und Raten-	
	verhältnissen	143
10)	Deduktion eines empfohlenen ²³⁸ U-Querschnitt-	
	satzes	145
11)	Einige Anwendungen des abgeleiteten ²³⁸ U-Quer-	
	schnittsatzes	150
12)	Schlußfolgerungen	158

TEILI

.

Entwicklung eines y-diskriminierenden Halbleitersandwichspektrometers mit ³He für In-Core-Spektrumsmessungen im Energiebereich von 100 keV bis 5 MeV

 Bemerkungen zur Verbesserung der Zuverlässigkeit von Neutronenspektrumsmessungen im Energiebereich von 10 keV bis 10 MeV

Ein detaillierter Vergleich von gemessenen und berechneten Neutronenspektren in einer schnellen kritischen oder unterkritischen Anordnung ist sicher eines der wirkungsvollsten Mittel zur Untersuchung der Zuverlässigkeit von Kerndaten und der Anwendbarkeit von mathematischen Modellen in der Reaktorberechnung. Aus diesem Vergleich lassen sich jedoch nur dann sinnvolle Aussagen gewinnen, wenn man die zur Spektrumsmessung verwendeten Methoden vollständig beherrscht und wenn die Abweichungen zwischen experimentellen und theoretischen Spektren die experimentellen Fehler übersteigen. Zur Bestimmung der Genauigkeit einer Spektrumsmessung gibt es die folgenden drei Möglichkeiten:

- Man versucht, eine detaillierte Fehleranalyse durchzuführen. Dazu ist eine Diskussion aller das Meßergebnis beeinflussenden Faktoren notwendig, wie z.B. Wirkungsquerschnitt, Geometrie, Untergrundstrahlung, Detektorcharakteristiken usw.. Auch wenn die vollständige Erfassung aller dieser Faktoren gelingt, wird das Ergebnis nicht völlig frei von einer subjektiven Einschätzung sein.
- 2. Man führt Messungen an einer Anordnung mit genau bekanntem Spektrum und unter genau bekannten Bedingungen durch. Leider ist es zur Zeit noch nicht möglich, eine derartige Anordnung für den in schnellen Reaktoren besonders wichtigen Energiebereich oberhalb 100 keV zu definieren.
- 3. Man mißt Spektren in einer Anzahl von verschiedenen Anordnungen mit voneinander völlig unabhängigen Methoden unter identischen Bedingungen und versucht, auf diese Weise zu Aussagen über Genauigkeit und Zuverlässigkeit der einzelnen Messungen zu gelangen. Dieser dritte Weg scheint zur Zeit der sinnvollste und aussichtsreichste zu sein. Notwendige Voraussetzung ist jedoch, daß sich die verschiedenen Meßmethoden in einem möglichst großen Energiebereich überlappen.

Im Teil I dieser Arbeit war es daher das Ziel, den Überlappungsbereich zwischen ³He-Halbleitersandwichspektrometern einerseits und zwischen Protonenrückstoß- und Flugzeitspektrometern andererseits zu erweitern und die genannten Vergleichsmessungen durchzuführen. Teil II befaßt sich sodann mit der Auswertung von Spektrumsmessungen in einem Uranmetallblock zur Verbesserung von ²³⁸U-Wirkungsquerschnitten.

2) Ein Vergleich von Halbleitersandwichspektrometern mit ${}^{\rm 6}{\rm Li}$ und ${}^{\rm 3}{\rm He}$

a) Einleitung

Die in diesem Abschnitt gegebene relativ ausführliche Darstellung des Vergleichs von 3 He- und 6 Li-Halbleitersandwichspektrometern soll dem besseren Verständnis des in den folgenden Abschnitten beschriebenen 3 He-Spektrometers mit γ -Diskriminierung dienen. Eine Zusammenfassung der wesentlichen Schlußfolgerungen dieses Vergleichs findet man jedoch in der Tabelle 1 am Ende des Abschnitts.

b) Funktionsprinzip der Halbleitersandwichspektrometer

Nachdem Si-Oberflächensperrschichtzähler mit gutem Auflösungsvermögen hergestellt werden konnten, war es möglich, kompakte sandwichartig aufgebaute Halbleiterspektrometer mit ⁶Li oder ³He als Targetmaterial für die Messung schneller Neutronenspektren zu verwenden. Die ⁶Li(n, α)t-Reaktion wurde erstmals von Love und Murray¹1961 in einem solchen Spektrometer benutzt, während der Bau eines ³He-Sandwich-Spektrometers 1962 von Dearnaly und Ferguson^{2,3} publiziert wurde. Das Funktionsprinzip dieser Neutronenspektrometer ist sehr einfach:

Zwischen zwei kreisförmigen Si-Detektoren befindet sich das Targetmaterial. Bei der Reaktion des Targets mit Neutronen werden zwei geladene Teilchen frei, die in Koinzidenz von den beiden Si-Detektoren nachgewiesen werden. Die Impulse der beiden Detektoren werden aufsummiert, und nach Subtraktion des Q-Wertes erhält man die Energie des die Reaktion auslösenden Neutrons. Die Reaktionen lassen sich durch die folgenden Gleichungen beschreiben:

Es wurde jedoch schon früh von vielen Experimentatoren⁴⁻²³ darauf hingewiesen, daß das in einem kontinuierlichen Neutronenspektrum gemessene Impulshöhenspektrum nur dann sinnvoll interpretiert werden kann, wenn zuvor eine Reihe von Fragen, die einerseits mit der Empfindlichkeit des Spektrometers gegen Untergrundstrahlung, andererseits mit der Kinematik der verwendeten Reaktion zusammenhängen, geklärt worden sind.

c) Einfluß der Reaktionskinematik auf die Nachweisempfindlichkeit

Während bei thermischen Neutronenenergien die Flugwege der beiden Reaktionsprodukte einen Winkel von exakt 180° miteinander bilden, werden mit wachsender Energie auch davon abweichende Winkel möglich. Betrachtet man die Kernreaktion I + II -- 1+2+Q, so gelten unter der Voraussetzung, daß das Teilchen II ruht, für den nichtrelativistischen Fall die folgenden Formeln für die Winkel ϑ_1 und ϑ_2 , die die Bahnen der Reaktionsprodukte mit dem Flugweg des Geschoßteilchens I im Laborsystem bilden.

$$tg \theta_1 = \frac{\sin \tilde{\theta}}{\rho_1 + \cos \tilde{\theta}} \qquad tg \theta_2 = \frac{\sin \tilde{\theta}}{\rho_2 - \cos \tilde{\theta}} \qquad (1)$$

$$\rho_{1} = \begin{bmatrix} \frac{m_{1}}{m_{2}} \frac{m_{I}}{m_{I}} \frac{E_{I}}{E_{I}} \end{bmatrix}$$

$$\rho_{2} = \begin{bmatrix} \frac{m_{2}}{m_{1}} \frac{m_{I}}{m_{I}} \frac{E_{I}}{m_{I}} \end{bmatrix}$$

Aus den Formeln läßt sich der Winkel, den die Flugwege der Reaktionsprodukte miteinander einschließen, berechnen:

$$tg \theta = tg(\theta_1 + \theta_2) = \frac{(\rho_1 + \rho_2) \sin \tilde{\theta}}{\rho_1 \cdot \rho_2^{-1} + (\rho_2 - \rho_1) \cos \tilde{\theta}}$$
(2)

Hieraus kann man den bei einer bestimmten Neutronenenergie minimal möglichen Winkel θ_m oder den Winkel $\bar{\theta}_m = \pi - \theta_m$ ermitteln. Man erhält

tg
$$\bar{\theta}_{m} = \frac{\rho_{1} + \rho_{2}}{(1 - \rho_{1}^{2})(1 - \rho_{2}^{2})}$$
, der entsprechende Wert für $\cos \bar{\vartheta}$

ist cos
$$\tilde{\vartheta}_{m} = \frac{\rho_{1} - \rho_{2}}{\rho_{1} \rho_{2} - 1}$$
 (3)

Mit wachsender Neutronenenergie nähert sich tg $\bar{\theta}_{m}$ im Falle der $^{6}\text{Li}(n,\alpha)\text{t-Reaktion}$ dem Wert

tg
$$\bar{\theta}_{\rm m}$$
 = 1 ($\tilde{\vartheta}_{\alpha \rm m}$ =97°) also $0 \leq \bar{\theta} \leq 45^{\rm O}$

und im Falle der ³He-Reaktion:

tg
$$\bar{\theta}_{\rm m} = \infty$$
 ($\tilde{\vartheta}_{\rm +m} = 180^{\rm O}$) also $0 = \bar{\theta} = 90^{\rm O}$

Die Wahrscheinlichkeit $p(\bar{\theta})$, mit der ein Winkel $\bar{\theta}$ auftritt, läßt sich aus dem differentiellen Wirkungsquerschnitt der Reaktion im Schwerpunktsystem berechnen:

$$p(\bar{\theta})d \cos \bar{\theta} = p(\bar{\vartheta})d \cos \bar{\vartheta} = 2\pi \frac{\sigma(\bar{\vartheta})d \cos \bar{\vartheta}}{\sigma_{tot}}$$
(4)

Bei der praktischen Durchführung der Berechnung ist in die Formel (4) der nach $\tilde{\vartheta}(\bar{\vartheta})$ aufgelöste Ausdruck aus (2) einzusetzen.

Zählverluste im Spektrometer treten nun immer dann ein, wenn beide Teilchen in ein und demselben Detektor nachgewiesen werden oder wenn eines der beiden oder beide Teilchen infolge des endlichen Abstands zwischen den Detektoren auf die Spektrometerwände treffen. Diese Zählverluste lassen sich also nicht durch beliebige Verringerung des Detektorabstands vermeiden, und sie sind außerdem im allgemeinen energieabhängig, da sowohl $\bar{\theta}$ als auch die Verteilung p $(\bar{\theta})$ d cos $\bar{\theta}$ energieabhängig sind. Man erkennt aber auch aus den für unendliche Neutronenenergie angegebenen Werten von $ar{ heta}_{ extsf{m}}$, daß die Zählverluste für ³He-Spektrometer mit wachsender Energie wesentlich größer sein werden als für ⁶Li-Spektrometer. Die Funktion, die die energieabhängigen Zählverluste der Sandwichspektrometer beschreibt, bezeichnet man als "geometrische Empfindlichkeit". Man kann zeigen, daß die geometrische Empfindlichkeit eines ⁶Li-Spektrometers, bei dem die ⁶Li enthaltende Schicht direkt auf einem der beiden Detektoren aufgebracht wurde, in einer isotropen Neutronenflußverteilung energieunabhängig wird, wenn der Abstand 1 zwischen den Detektoren den Wert $1 = 2 R_d tg \theta_m$ überschreitet³⁸ (R_d = Detektorradius).

Neben dem Winkel, den die Flugwege der Reaktionsprodukte miteinander einschließen, kann noch ihre Energieverteilung für den Verlauf der geometrischen Empfindlichkeit von Bedeutung sein; dies gilt insbesondere dann, wenn durch das elektronische System Diskriminatorschwellen zur Unterdrückung von Untergrundimpulsen in die Detektorkreise eingeführt werden. Mit Hilfe von Impuls und Energiesatz erhält man für die Energie der Reaktionsprodukte:

$$E_{1} = \frac{\left\{ \frac{\left[m_{I}m_{1}E_{I}\cos\vartheta_{1} + \frac{m_{I}m_{1}E_{I}\cos^{2}\vartheta_{1} + M/m_{2}Q + (m_{2}-m_{I})E_{I}}{M^{2}}\right\}^{2}}{M^{2}}{}(5)$$

 $E_2 = E_1 + Q - E_1$

Speziell gelten für die ⁶Li (n,α) t- und für die ³He(n,p)t-Reaktion die folgenden Formeln:

⁶Li:
$$E_{\alpha} = \frac{\left\{ \begin{array}{c} 4 & E_{n} & \cos \vartheta_{\alpha} + 1 & 4 & E_{n} & \cos^{2}\vartheta_{\alpha} + 21 & Q + 4 & E_{n} \end{array} \right\}^{2}}{49}$$

 $E_{t} = E_{n} + Q - E_{\alpha}$
³He: $E_{t} = \frac{\left\{ \begin{array}{c} 3 & E_{n} & \cos \vartheta_{t} + 1 & 3 & E_{n} & \cos^{2}\vartheta_{t} + 4Q \end{array} \right\}^{2}}{16}$
 $E_{p} = E_{n} + Q - E_{t}$
(6)

Für jede Neutronenenergie kann man nun aus diesen Formeln maximal und minimal mögliche Energien E_{α} , E_{t} , E_{p} berechnen.

⁶Li:
$$E_{\alpha\min} = \frac{1}{49} \left\{ - \left[\frac{4E_n}{4E_n} + \frac{18E_n + 21Q}{18E_n + 21Q} \right]^2 \right\}^2$$
, $E_{\tan x} = E_n + Q - E_{\alpha\min}$
 $E_{\alpha\max} = \frac{1}{49} \left\{ \frac{1}{4E_n} + \frac{18E_n + 21Q}{18E_n + 21Q} \right\}^2$, $E_{\min} = E_n + Q - E_{\alpha\max}$
³He: $E_{\min} = \frac{1}{16} \left\{ - \frac{3E_n}{3E_n} + \frac{3E_n + 4Q}{3E_n + 4Q} \right\}^2$, $E_{p\max} = E_n + Q - E_{\min}$
 $E_{\max} = \frac{1}{16} \left\{ - \frac{3E_n}{3E_n} + \frac{3E_n + 4Q}{3E_n + 4Q} \right\}^2$, $E_{p\min} = E_n + Q - E_{\max}$
(7)

Die kleinste, überhaupt mögliche α -Energie erhält man bei einer Neutronenenergie von $E_n = \frac{1}{3} Q \approx 1.6$ MeV mit $E_{\alpha \min} = \frac{1}{3} Q$ (Abb.1). Im Gegensatz dazu geht bei der ³He(n,p)t-Reaktion die minimale Tritonenenergie mit wachsender Neutronenenergie gegen Null (Abb.2). Dies bedeutet nun, daß Tritonenabsorptionen im Target und in den Halbleiterkontaktschichten sowie Unterdrückungen von Tritonenimpulsen in den immer notwendigen Diskriminatorschwellen der Elektronik zu energieabhängigen Zählverlusten führen werden. Bei Verwendung der ⁶Li(n, α)t-Reaktion lassen sich Diskriminatorschwellen immer so wählen, daß keine Zählverluste eintreten.

d) Vergleich des energetischen Auflösungsvermögens für die Summentechnik

Das energetische Auflösungsvermögen W_{tot} der Sandwichspektrometer wird definiert als die Halbwertsbreite der Antwortfunktion für monoenergetische Neutronen. Es ist bedingt durch die Detektor- und Vorverstärkercharakteristiken sowie durch die Streuung der Energieverluste der Reaktionsprodukte im Targetmaterial und in den Kontaktschichten der Halbleiter. Allgemein läßt sich schreiben:

$$W_{tot}^{2} = \sum_{i=1}^{2} \left[W_{det_{i}}^{2} + W_{amp_{i}}^{2} \right] + W_{target}^{2}$$

Dabei bedeutet W_{det}^2 den Beitrag, der allein von den Detektoreigenschaften herrührt. Detektorbedingte Rauschquellen sind



<u>Abb.1</u> Minimale α - und Triton-Energie als Funktion der Neutronenenergie für die Li⁶(n, α)t-Reaktion



Abb.2 Minimale t- und p-Energie bei der He³(n,p)t-Reaktion

Leckströme, unvollständige Ladungssammlung infolge von Rekombination und Trapping sowie die Statistik der Elektron-Loch-Paar-Erzeugung. Die Höhe dieses Beitrags ist eine Funktion der Betriebstemperatur sowie der Vorgeschichte des Detektors. W^2_{amp} ist der Beitrag des Vorverstärker- und Verstärkerrauschens. Man erhält diesen Anteil, wenn man den Detektor und die Zuleitungskabel durch eine äquivalente Kapazität ersetzt. Der Gesamtanteil der detektor- und vorverstärkerbedingten Rauschquellen ist wiederum eine Funktion der Impulsformzeiten. Der Beitrag W^2_{target} überwiegt im allgemeinen, er hängt von der Dicke und der Art des Targets, vom Quadrat der Ladungszahlen und den Energien der Reaktionsprodukte sowie von der Geometrie des Spektrometers ab. Dieser Beitrag muß bei einem Vergleich von ³He-und ⁶Li-Spektrometern diskutiert werden.

Der Energieverlust pro Wegelement eines geladenen schweren Teilchens beim Durchgang durch Materie läßt sich in der Bethe-Bloch-Theorie beschreiben durch :

$$\frac{\mathrm{dE}}{\mathrm{ds}} = \frac{9 \cdot \pi \cdot \mathrm{e}^4 \cdot \mathrm{z}^2 \cdot \mathrm{m}}{\mathrm{m}_{\mathrm{c}} \mathrm{E}} \operatorname{NZ} \left\{ \ln \frac{4 \cdot \mathrm{m}_{\mathrm{c}} \cdot \mathrm{E}}{\mathrm{m}_{\mathrm{J}}} - \ln \left(1 - \frac{2\mathrm{E}}{\mathrm{m}_{\mathrm{c}}^2}\right) - \frac{2\mathrm{E}}{\mathrm{m}_{\mathrm{c}}^2} \right\}$$
(8)

dabei bedeuten:

- z = Ladungszahl des Teilchens
- E = Energie des Teilchens
- m = Masse des Teilchens
- m = Elektronenmasse
- Z = Ladungszahl der Materialatome
- J = mittleres Anregungs- und Ionisierungspotential
- $N = Atome/cm^3$

Aus dieser Formel erkennt man, daß für nichtrelativistische Teilchen der spezifische Energieverlust von α -Teilchen etwa 16 mal so groß wie von Protonen und 5 mal so groß wie der

von Tritonen gleicher Energie ist. Experimentelle Ergebnisse für ⁶Li-Spektrometer bestätigen²⁴, daß das Auflösungsvermögen überwiegend durch die Energieverlustverteilung der a-Teilchen bestimmt ist. Infolge des großen chemischen Reaktionsvermögens von Li war es bisher nicht möglich, Li in metallischer Form in Spektrometern zu verwenden. Am häufigsten wird daher LiF verwendet. Aus Gleichung 8 erkennt man jedoch auch, daß infolge der relativ hohen Ladungszahl 9 von Flour im Vergleich zu 3 von Li der größte Teil der Energieverluste durch Streuung an Flour-Atomen eintreten wird. Er ist für 2 MeV a-Teilchen etwa 2.8 mal so groß wie bei Stößen mit Li-Atomen²⁹. Für Reaktionen mit thermischen Neutronen erhält man in ⁶Li F-Spektrometern einen Energieverlust von $63.0 \cdot 10^{-18} \frac{\text{keV}}{\text{Atom/cm}^2}$, während er für ³He-Spektrometer nur $10 \cdot 10^{-18} \frac{\text{keV}}{\text{Atom/cm}^2}$ beträgt. Hierbei wurden nur die Energieverluste im Targetmaterial und nicht auch die Energieverluste in den Halbleiterkontaktschichten berücksichtigt, welche die Werte noch weiter zu Gunsten des 3 He-Spektrometers verschieben. Dies bedeutet, daß man bei gleichem energetischen Auflösungsvermögen in einem ³He-Spektrometer etwa 6.3 mal soviele Atome unterbringen kann.

e) Vergleich der Wirkungsquerschnitte

Der Wirkungsquerschnitt einer zur Neutronenspektrometrie verwendeten Reaktion sollte 1. einen möglichst konstanten resonanzfreien und genau bekannten relativen Verlauf besitzen und 2. genügend hohe Werte aufweisen. Diesen Forderungen entspricht der ³He(n,p)t-Querschnitt weit mehr als der ⁶Li(n, α)t-Querschnitt.

Letzterer besitzt bei 250 keV eine breite ausgeprägte Resonanz, welche die Auswertung des gemessenen Spektrums im Energiebereich von 150 keV bis 500 keV erheblich erschwert. Sie erfordert vor allem eine sehr exakte Energieeichung und beeinträchtigt die Interpretation von Spektren, die mit ungenügender Auflösung gemessen wurden.

Da der 6 Li(n, α)t-Querschnitt unter anderem auch als Standardquerschnitt bei Kerndatenmessungen verwendet wird, gibt es eine

große Anzahl von Messungen zu seiner Bestimmung sowie eine Reihe von zusammenfassenden Auswertungen 30-33. Die Diskrepanzen zwischen den Messungen sind beträchtlich, jedoch scheint es gerechtfertigt zu sein, einige der älteren Messungen außer acht zu lassen, bei denen ungenau bekannte Referenzquerschnitte benutzt wurden oder keine Korrekturen für Streueffekte bei Verwendung von dicken ^bLi-Proben durchgeführt wurden. Die verbleibenden und einige neuere Messungen sind in Abb.3 zusammengestellt. Im Energiebereich von 10-500 keV haben Sowerby et al.³⁶ den ⁶Li(n, α)t-Querschnitt aus Messungen des totalen Querschnitts unter der Annahme berechnet, daß der totale Querschnitt sich aus einer p-Wellen-Resonanz, die auf einem s-Wellen-Untergrund sitzt, zusammensetzt. Diesen Berechnungen wurden die Messungen des totalen Querschnitts von Uttley und Diment³⁷, die sich von 70 eV bis 7 MeV erstrecken, zugrunde gelegt. Die Ergebnisse dieser Rechnung sind gleichfalls in Abb.3 eingezeichnet. Während sie auf der hochenergetischen Seite der Resonanz sehr gut mit den Messungen von Fort und Schwarz et al. übereinstimmen,liegen sie auf der niederenergetischen Seite erheblich darüber.(Lediglich die Messung von Coates³⁸ zeigt hier ausgezeichnete Übereinstimmung mit den berechneten Werten.) Im Energiebereich von 10 keV bis 100 keV ist die Übereinstimmung i.a. jedoch wieder zufriedenstellend. In diesem Energieintervall weicht nur die Messung von Cox erheblich von den berechneten Werten ab. Da diese Messung jedoch mit dem totalen Querschnitt von Uttley und Diment unvereinbar ist, muß eine der beiden Messungen falsch sein. Zwischen 600 keV und 1.7 MeV ist die Anzahl der zuverlässigen Meßdaten sehr spärlich, und die Unsicherheit im Querschnittsverlauf beträgt hier sicher mehr als 15%.

Rae et al.³¹ geben in ihrer Auswertung folgende Werte für die Unsicherheit des von ihnen empfohlenen 6 Li(n, α)t-Querschnitts an:

1% bei 10 keV, 2% bei 100 keV, 5% zwischen 150 und 300 keV, 10% bei 500 keV, 15% zwischen 500 keV und 1 MeV, 10% bei 1.7 MeV.



Debruytter³² hingegen gibt folgende Werte an: 10 keV: 5%, 100 keV: 5%, 100-500 keV: 10%, 0.5-3.2 MeV: 20%.

Auch wenn man berücksichtigt, daß für Spektrumsmessungen in erster Linie der relative Verlauf des Querschnitts von Bedeutung ist und daß einige Meßergebnisse in der Form besser übereinstimmen als in ihren absoluten Werten, so verhindern die großen Diskrepanzen im Resonanzgebiet dennoch eine wesentlich zuverlässigere Definition des relativen Querschnittverlaufs für den gesamten Energiebereich oberhalb 10 keV.

Der Fehler der absoluten Werte des ³He(n,p)t-Querschnitts wird in ^{32,33} und ³⁹ für Energien oberhalb 5 keV mit $\approx 10^{8}$ angegeben. Der für Spektrumsmessungen in erster Linie interessante relative Verlauf ist jedoch auf etwa 2% bekannt³². Diesen relativen Verlauf berechnet man nämlich aus der sehr genau gemessenen Umkehrreaktion p(t,n)³He. Der größte Teil der in Abb.4 gezeigten Daten beruht auf solchen Berechnungen, und es sind nur 3 direkte Messungen^{45,47,48} bekannt, von denen die beiden älteren infolge der großen Korrekturen, die für raumgestreute Neutronen gemacht werden mußten, sehr unzuverlässig sind. Eine neuere Messung⁴⁸, bei der raumgestreute Neutronen sorgfältig vermieden wurden, bestätigt hingegen die aus der Umkehrreaktion gewonnenen Daten.

Ein Vergleich der absoluten Werte des ³He(n,p)t- und des ⁶Li(n, α)t-Querschnitts zeigt, daß im Energiebereich oberhalb 500 keV, wo die Intensität von Reaktorspektren sehr stark abnimmt, der ³He-Querschnitt 4-4.5 mal so groß ist wie der ⁶Li-Querschnitt. Dies bedeutet unter Berücksichtigung des in 2d) Gesagten, daß das ³He-Spektrometer bei gleichem energetischen Auflösungsvermögen etwa 20-30 mal empfindlicher ist als das ⁶Li-Spektrometer.



f) Konkurrenzreaktionen

Konkurrenzreaktionen können unter Umständen die eindeutige Zuordnung von gemessener Teilchenenergie und Neutronenenergie zerstören. Für ⁶Li sind unterhalb 15 MeV eine ganze Reihe von Konkurrenzreaktionen bekannt⁴⁹, von denen jedoch nur die ⁶Li(n, α)dn'-Reaktion von Bedeutung ist. Ihr Querschnitt ist bei 6 MeV etwa 10 mal so groß wie der der ⁶Li(n, α)t-Reaktion. Da sie jedoch einen negativen Q-Wert von -1.471 MeV besitzt und da das bei der Reaktion entstehende Neutron im Mittel etwa 1-2 MeV fortträgt, ist der energetische Abstand zur ⁶Li(n, α)t-Reaktion genügend groß, um für Reaktorspektren, die zu hohen Energien genügend schnell abfallen, eine verhängnisvolle Interferenz von (n, α)t und (n, α)dn' Impulsen zu verhindern³⁵.

Die einzige unterhalb 15 MeV mögliche Konkurrenzreaktion zur ³He(n,p)t-Reaktion ist die ³He(n,d)d-Reaktion mit einem Q-Wert von -3.256 MeV. Ihr Querschnitt beträgt bei 6 MeV $\frac{1}{7}$ und bei 10 MeV $\frac{2}{5}$ des ³He(n,p)t-Wertes. Diese geringen Werte und der energetische Abstand von 4 MeV zur ³He(n,p)t-Reaktion führen für Reaktorspektren nur zu einer vernachlässigbaren Interferenz von (n,p)t und (n,d)d Impulsen.

Für Spektren mit relativ großen hochenergetischen Anteilen (z.B. Am-Be-Quellspektren) führen die Konkurrenzreaktionen jedoch zu erheblichen Zählraten, so daß die Auswertung von ⁶Li-Spektren über einen großen Energiebereich nahezu unmöglich und bei der Interpretation von ³He-Spektren eine Korrektur für den Beitrag der (n,d)d-Reaktion notwendig wird.

g) Empfindlichkeit gegen Untergrundstrahlung

Damit (n,p) und (n,α) -Reaktionen im Si der Halbleiterzähler zu koinzidenten Impulsen führen, müssen die bei der Reaktion entstandenen Teilchen in beiden Detektoren soviel Energie abgeben, wie zur Überwindung eventuell vorgegebener Diskri-

minatorschwellen notwendig ist. Ist die dabei abgegebene Gesamtenergie außerdem größer als der Q-Wert der Targetreaktion, so sind solche Ereignisse von echten, durch Reaktionen mit dem Konversionselement verursachten Koinzidenzimpulsen, nicht mehr zu unterscheiden. Sie müssen daher in einer gesonderten Messung mit entferntem Target bestimmt und vom Gesamtspektrum subtrahiert werden. Die relative Bedeutung dieses Untergrundes in ⁶Li-Spektrometern hat Rydin^{50,51} für eine Reihe von Targetund Detektorsperrschichtdicken sowie verschiedene Diskriminatorschwellen für Spaltspektren und Pu-Be-Spektren berechnet. Dabei ergab sich für die Intensität bei höheren Energien eine starke und bei niedrigen Energien nur eine schwache Abhängigkeit von der Sperrschichtdicke der Detektoren; die Diskriminatorschwelle hat hingegen einen starken Einfluß bei niedrigen und nur einen schwachen Einfluß bei höheren Energien.

Da der Q-Wert der ⁶Li-Reaktion bedeutend größer ist als der Q-Wert der ³He-Reaktion und da man außerdem, wie in 2c) gezeigt wurde, in ⁶Li-Spektrometern Diskriminatorschwellen bis zu 1.6 MeV einführen kann, könnte man bei Berücksichtigung des Anwachsens der Intensität der Untergrundereignisse Rydin^{50,51} zu niedrigen Energien aus den Ergebnissen von schließen, daß der relative Anteil der Untergrund-Zählrate in ³He-Spektrometern bedeutend größer ist als in ⁶Li-Spektrometern. Da jedoch ³He-Spektrometer bei gleicher Auflösung 20-30mal empfindlicher sind, ist der relative Anteil der Untergrundimpulse in ³He-Spektrometern tatsächlich geringer. Dies zeigen die Abb.5 und 6. Obwohl die Sperrschicht der Si-Detektoren im ³He-Spektrometer dicker und die Auflösung mit 90 keV Halbwertsbreite doppelt so gut wie beim ⁶Li-Spektrometer von Abb.5 ist, beträgt der Untergrund in Abb.6 nur maximal 17% vom Gesamtspektrum, während er in Abb.5 bis auf maximal 35% anwächst. Um größere Fehler im Neutronenspektrum zu vermeiden, ist daher eine sehr genaue Bestimmung des Untergrundspektrums notwendig. Dazu ersetzt man den Konverter im gleichen Spektrometer durch ein Dummy-Target (⁷LiF, ⁴He), dem zur Reproduktion der Energieeichung eine geringe Menge



<u>Abb.5</u> Impulshöhenspektrum und Si-Untergrundspektrum in einem ⁶Li-Halbleiterspektrometer





des Konverterelements beigefügt wird. Für Spektrometer, bei denen die ⁶LiF-Schicht direkt auf einem der beiden Detektoren aufgedampft wurde, hat es sich als vorteilhaft erwiesen, zunächst mit einer sehr dünnen ⁶LiF-Schicht das Untergrundspektrum zu bestimmen und danach mit der in einer zweiten Bedampfung vergrößerten Schicht das Gesamtspektrum zu messen²⁷. Eine gewisse Reduktion und eine bessere Reproduzierbarkeit des Untergrundspektrums in ⁶Li-Spektrometern läßt sich außerdem erreichen, wenn man eine zweiparametrige Analyse der Impulshöhenverteilung durchführt²⁷. Dabei wird als ein Parameter die Summe der Teilchenenergien verwendet und als zweiter Parameter die Tritonenenergie. Wie in 2c) gezeigt wurde, gehört zu jeder Neutronenenergie eine minimal und eine maximal mögliche Teilchenenergie. Impulse, die außerhalb dieser Energiegrenzen auftreten, können daher auf Untergrundereignisse zurückgeführt und eliminiert werden.

Da in der Praxis jedes Neutronenfeld von einem γ -Feld begleitet wird, muß man auch das durch γ -Strahlen verursachte Impulshöhenspektrum in den Halbleiterspektrometern betrachten. Für γ -Energien von 150 keV bis 5 MeV ist Comptonstreuung in den Si-Halbleiterdetektoren oder den Spektrometerwänden der wahrscheinlichste Wechselwirkungsprozeß. Die maximale Energie, die dabei auf ein Elektron übertragen werden kann, berechnet man aus

$$E_{max} = \frac{2 E_{\gamma}^2}{(mc^2 + 2 E_{\gamma})}$$

Das aus solchen γ-induzierten Ereignissen resultierende Impulshöhenspektrum ist eine komplizierte Funktion des γ-Spektrums, der Energieverteilung der Comptonelektronen, des Comptonstreuquerschnitts, der Sperrschichtabmessungen der Detektoren, der Diskriminatorschwellen sowie der Zeitkonstanten der Elektronik.

Infolge von "Straggling" und Vielfachstreuung mit großer Winkeländerung ist es nicht möglich, durch eine einfache geometrische Flugwegbetrachtung die maximale von einem Elektron im Spektro-

meter abgegebene Energie zuverlässig abzuschätzen. Außerdem spielen bei hohen y-Zählraten sowohl zufällige Koinzidenzen als auch Pile-up Effekte mit wahren Koinzidenzen eine wichtige Rolle. Da die mittlere Energie des Spaltgammaspektrums jedoch bei 1 MeV liegt, verhindert der hohe Q-Wert der 6 Li(n, α)t-Reaktion (4.78 MeV), daß eine Interferenz zwischen neutroneninduziertem und y-induziertem Impulshöhenspektrum eintritt. Bei ³He-Spektrometern reicht der Q-Wert von 764 keV jedoch nicht mehr aus, um das Neutronenspektrum vom γ -Spektrum zu separieren. Abb.7 zeigt dies deutlich für Neutronen einer Am-Be-Quelle, die in einem Graphitpile thermalisiert wurden. Ohne y-Untergrund würde man eine monoenergetische Linie bei 764 keV erwarten. Tatsächlich erhält man jedoch bereits unter den relativ günstigen Bedingungen des Graphitpiles (schwache y-Intensität der Am-Be-Quelle, hoher thermischer Wirkungsquerschnitt von ³He) einen Neutronenpeak, der auf einem breiten γ-Untergrund sitzt. Ohne geeignete Maßnahmen zur γ-Diskriminierung ist ein ³He-Halbleiterspektrometer daher für die Messung von Neutronenspektren unterhalb 1.5 MeV in Reaktoren nicht anwendbar; das Neutronenspektrum wird in diesem Energiebereich vom y-Spektrum völlig überdeckt.

h) Auswirkung von Strahlenschäden auf die Verwendbarkeit der Spektrometer

Eine intensive Bestrahlung mit energiereichen Neutronen verändert allmählich die elektronischen Eigenschaften der Si-Oberflächensperrschichtzähler. Bei schnellen Neutronendosen von mehr als 10¹² bis 10¹³ pro cm² sind die Veränderungen des Auflösungsvermögens und der Anstiegszeiten so stark, daß die Detektoren nicht mehr verwendet werden können. Die erste Veränderung, die auf Grund von Strahlenschäden festgestellt werden kann, ist ein Anwachsen des Sperrstromes; dies hat zur Folge, daß die effektive, an der Sperrschicht anliegende Spannung infolge von Spannungsabfall am Ladewiderstand abnimmt. Letzteres wiederum kann zu einer Verminderung der Sperrschichtdicke und zu einer Verschiebung der Peaklage einer monoenerge-



Abb.7 Impulshöhenspektrum von thermalisierten Neutronen (Am-Be-Quelle in Graphit) im ³He-Spektrometer

tischen Neutronengruppe führen. Um dies zu verhindern, muß der Sperrstrom unter Umständen ständig kontrolliert und die Spannung gegebenenfalls korrigiert werden. Später wird auch eine Verschlechterung des Auflösungsvermögens beobachtet. Dies hat seine Ursache in der Schaffung von Rekombinationsund Einfangzentren durch Si-Atome, die bei Stößen mit schnellen Neutronen von ihren Gitterplätzen herausgerissen wurden. Die dadurch bedingte unvollständige Ladungssammlung kann in gewissem Umfang durch Anlegen einer höheren Feldstärke wieder ausgeglichen werden. Die Veränderung der Impulsanstiegszeiten bei hohen Neutronendosen führt außerdem zu einer Zerstörung der Koinzidenzeinstellung¹⁷. Daher muß man 1. darauf achten, daß die Koinzidenzauflösung nicht zu klein gewählt wird und 2. die Koinzidenzeinstellung gegebenenfalls korrigieren. Infolge der höheren Empfindlichkeit sind jedoch zur Messung von Spektren mit gleicher statistischer Genauigkeit mit ³He-Spektrometern geringere integrale Neutronenflüsse notwendig als mit ⁶Li-Spektrometern. Strahlenschäden an den Si-Detektoren treten daher in ³He-Spektrometern in wesentlich geringerem Maße auf als in ⁶Li-Spektrometern.

i) Untere Energiegrenze für die Anwendbarkeit der Spektrometer

Neben der normalerweise angewandten Summentechnik ist es auch möglich, in ⁶Li-Spektrometern nur das Tritonenspektrum auszuwerten^{5,10,24,25,27}. Ähnlich wie beim Protonenrückstoßspektrometer gehört zu jeder Neutronenenergie eine rechteckförmige Tritonenenergieverteilung, aus der man mittels Entfaltung die Neutronenenergieverteilung erhält. Der Vorteil dieser Methode besteht nun darin, daß man mit einer relativ schlechten Tritonenenergieauflösung eine sehr gute Neutronenenergieauflösung erhält. Dies ist auf die Tatsache zurückzuführen, daß die Ableitung der maximalen Tritonenenergie $E_{t_{max}}$ nach der Neutronenenergie E_n im Grenzfall $E_n 0$ gegen Unendlich strebt. Man erhält nämlich aus Formel 7:

$$\frac{dE_{t_{max}}}{dE_{n}} = 0.552 + 0.409E_{n}^{-1/2} (1 + 0.178E_{n})^{1/2} + 0.073E_{n}^{1/2} (1 + 0.178E_{n})^{-1/2}$$

So ist es beispielsweise möglich, mit einer Tritonenenergieauflösung von 20 keV bei einer Neutronenenergie von 15 keV eine Auflösung von 5.11 keV zu erreichen. Da man bei dieser Methode nur die Tritonen verwendet, ist die Auflösung prinzipiell wesentlich besser als bei der Summentechnik, und es scheint nicht unrealistisch zu sein, daß das Neutronenspektrum mit dieser Methode bis etwa 5 keV gemessen werden kann. Erfolgreiche Messungen bis 10 keV sind zur Zeit bereits möglich^{34,52}. Bei kombinierter Anwendung der Summentechnik und der Tritonentechnik kann das Neutronenspektrum mit einem einzigen ⁶Li-Spektrometer somit von 5 keV bis 6 MeV ohne Normierungsprobleme gemessen werden. Ein Nachteil der Tritonentechnik besteht jedoch in der ungenauen Kenntnis der differentiellen Wirkungsquerschnitte, die die Form der Tritonenenergieverteilung bestimmen. Unterhalb 100 keV Neutronenenergie sind die hierdurch verursachten Fehler im entfalteten Spektrum jedoch gering⁵².

Das ³He-Spektrometer bietet infolge der Gasförmigkeit des Targets prinzipiell die Möglichkeit, die Energieverluste der Teilchen im Target zu messen und zu korrigieren. (Dies wird in Abschnitt 4 beschrieben.) Dadurch ist das Auflösungsvermögen des ³He-Spektrometers hauptsächlich von den Eigenschaften der Halbleiterdetektoren bestimmt. Für kleine Detektoren ist es möglich, Protonen und Tritonen mit einer Energieauflösung von etwa 20 keV zu messen, ihre Summe also mit $\Delta E = \pm 28.3$ keV. Da man im allgemeinen annimmt, daß Messungen bis zu einer Energie von 2 ΔE ausgewertet werden können, liegt die untere Grenze der ³He-Spektrometer bei 50 keV. Mit Hilfe von Entfaltungstechniken kann sie vielleicht noch etwas unterschritten werden.

j) Zusammenfassung

In Tabelle 1 wurden die Eigenschaften des 3 He- und des 6 Li-Spektrometers nochmals gegenübergestellt. Die Vorteile des 3 He-Spektrometers sind offensichtlich, sofern man sich auf die Messung des Energiebereichs oberhalb 100 keV beschränkt und sofern es gelingt, 1. eine Methode zur γ -Diskriminierung zu entwickeln, 2. die Energieverluste der Reaktionsprodukte zu korrigieren, 3. die geometrische Empfindlichkeit genau zu berechnen. Diese 3 Punkte sind Gegenstand der folgenden Abschnitte. Ausschlaggebend für die Entscheidung für das 3 He-Spektrometer sind vor allem die wesentlich größere Empfindlichkeit und die dadurch bedingte geringere Bedeutung von Strahlenschäden und Untergrundreaktionen im Si sowie der genauer bekannte resonanzfreie Wirkungsquerschnitt.

Tabelle 1 Vergleich von ³He- und ⁶Li-Halbleitersandwichspektrometern

	³ He-Spektrometer	⁶ Li-Spektrometer
Reaktionscharak- teristiken	$ \begin{array}{c} {}^{3}_{2}\mathrm{He+}^{1}_{O}\mathrm{n-}^{3}_{1}\mathrm{T+}^{1}_{1}\mathrm{H+}\mathrm{O.764~MeV} \\ \mathrm{Grenzwinkel~zwischen~Proton} \\ \mathrm{und~Triton~} \theta_{m} = 90^{O} \\ \mathrm{Minimale~Teilchenenergie} \\ \mathrm{für~E_{n}-}^{\infty} \qquad \mathrm{E_{t_{min}} = O} \end{array} $	$ \begin{array}{c} {}^{6}_{3}\text{Li} + {}^{1}_{6}n - {}^{3}_{1}\text{T} + {}^{4}_{2}\text{He} + 4.78 \text{ MeV} \\ \text{Grenzwinkel zwischen Tri-} \\ \text{ton u. } \alpha - \text{Teilchen } \theta = 135^{\circ} \\ \text{Min. Teilchenenergie} \\ \text{für } \text{E}_{n} - \infty \text{E}_{\alpha \min} = 1.6 \text{ MeV} \end{array} $
geom.Empfindlich- keit	komplizierte Funktion; ab- hängig v.Targetdicke,Dis- kriminatorschwellen u.Geo- metrie, starke Energieab- hängigkeit	schwache Energieabhängig- keit od.in isotropem Fluß für 1/2R _d ≥tg 0 _m konstant 1 = Abstand zw.d.Detektoren R _d = Detektorradius
Energieauflösung bei gleicher Empfindlichkeit	<pre>gute Energieauflösung, da nur Teilchen mit Ladung 1 entstehen u.Target in ele- mentarer Form vorhanden; Energieverluste d.Teilchen korrigierbar; untere Grenze d.auswertb.Neutronenspektr. ≈ 50 keV</pre>	Summentechnik:schlechte En- ergieauflösung durch Ener- gieverluste der α -Teilchen im Target.Target nur in Form v.Verb. vorhanden (⁶ LiF) <u>Tritonentechnik</u> :sehr gute Energieauflösung infolge d. Eigenschaften d.Reaktions- kinematik: $\frac{dE_{tmax}}{dE_{n}} \longrightarrow $ für $E_{n} \longrightarrow $ 0 Untere Grenze d.auswertb. Neutronenspektrums: Summentechnik: 100 keV Tritonentechnik: 5 keV
Empfindlichkeit bei gleicher Energieauflösung	20-30mal empfindlicher als ⁶ Li-Spektrometer in Summen- technik	20-30mal weniger empfind- lich als ³ He-Spektrometer
Wirkungsquer- schnitt	glatter resonanzfreier Wir- kungsquerschnitt;für Energ. oberh.500 keV 3-5mal größer als 6Li-Querschnitt. Rel. Verlauf aus Umkehrreaktion sehr genau berechenbar(±5%)	Resonanz bei 250 keV.Diskre- panzen im rel.Verlauf zw.10 keV u.250 keV. Oberhalb 500 keV auf≈15% bekannt
Konkurrenz- reaktionen	für Reaktorspektren unbe- deutend, für Quellspektren korrigierbar	für Reaktorspektren unbe- deutend, für Quellspektren sehr wichtig, nicht korrigb.
Empfindlichkt. gegen Untergrund- strahlung	Si(n,p)u.Si(n,α)Reaktionen führen zu einem Untergrund, d.für Reaktorspektren ≈15% beträgt γ-Untergrund macht d.klass. ³ He-Spektromtr.unterh.1.5Mev f.Messung v.Reaktorspek.un- brauchbar	Der Untergrund aus Si(n,p) und Si(n,α)Reaktionen be- trägt für Reaktorspektren ≪35% γ-Untergrund spielt keine Rolle
Strahlenschäden	Inf.höherer Empfindlichk. spielen Strahlensch.eine geringe Rolle,20-30 Spektr. können mit einem Detektor- paar mit ausreichender Sta- tistik gemessen werden.	Strahlenschäden erfordern eine ständige Kontrolle der Spektrometereinstellung Nur 2-3 Spektr.können mit einem Detektorpaar m.aus- reichender Stat.gemessen werd

3) Konstruktion eines γ -diskriminierenden und Energieverlust korrigierenden ³He-Spektrometers

a) Möglichkeiten zur γ -Diskriminierung in ³He-Spektrometern

In Abschnitt 2e) wurde gezeigt, daß das aus γ -induzierten Ereignissen resultierende Impulshöhenspektrum die Auswertung von Neutronenspektren unterhalb 1.5 MeV unmöglich macht. Eine Subtraktionsmethode scheidet deshalb aus, weil die Intensität des γ -Spektrums in diesem Energiebereich ein Vielfaches der Intensität des Neutronenspektrums beträgt und weil man in schnellen Nulleistungsanordnungen keine Konstanz der Intensität des γ -Spektrums während einer mehrere Stunden dauernden Messung voraussetzen kann. Daher verbleiben noch drei Möglichkeiten zur Unterdrückung von γ -Untergrund in ³He-Spektrometern:

- Man umgibt das Spektrometer mit einer geeigneten Bleiabschirmung.
- 2. Man verwendet sehr dünne und kleine Detektoren.
- 3. Man separiert die γ -Impulse mit Hilfe eines dE/dx-Zählers.

Eine gewisse Reduktion des γ -Untergrunds erhält man auch durch Verwendung einer schnellen Elektronik und kleiner Impulsbreiten, jedoch lassen sich dadurch nur solche γ -Ereignisse unterdrücken, bei denen entweder an sich koinzidente Impulse durch Pile-up-Effekte die notwendige Gesamtenergie erlangt haben oder zufällig koinzidente Impulse mit und ohne Pile-up die Zählbedingungen erfüllen. Diese Effekte werden an Hand des Blockschaltbilds in Abschnitt 3d) noch ausführlicher diskutiert werden. Eine ausreichende Reduktion des γ -Untergrunds durch eine schnelle Elektronik läßt sich jedoch nicht erreichen, da die Mehrzahl der γ -Ereignisse auf koinzidente Einzelimpulse zurückzuführen sind.

Eine Bleiabschirmung zur Reduktion von γ -Untergrund in ³He-Spektrometern wurde von Lee et al.⁸ und Silk¹³ verwendet. Um eine ausreichende Abschirmung zu erhalten, sind Bleiwandstärken von mehr als 1 cm Dicke notwendig. Die Einführung einer derart
massiven Abschirmung hat den großen Nachteil, daß dadurch das zu messende Spektrum unter Umständen erheblich gestört wird.

Die Verwendung von sehr dünnen ($= 100 \mu$) Detektoren bringt eine wesentliche Verbesserung des Signal-Untergrund-Verhältnisses, wenn der Abstand zwischen den Detektoren außerdem genügend groß gemacht wird, so daß schräg einfallende Elektronen keine zu großen Si-Schichten vorfinden. Ein Beispiel für die Verbesserung des Signal-Untergrund-Verhältnisses zeigt die Abb.8 für den Übergang von 200 μ auf 100 μ dicke Detektoren. Bei thermischen Neutronenenergien wird das Verhältnis um etwa einen Faktor 20, bei 300 keV bereits um einen Faktor 100 verbessert. Dies würde für die betreffende Anordnung (SUAK UHC) und Spektrometerempfindlichkeit bereits ausreichen. Die Verwendung von dünnen Detektoren hat jedoch zwei Nachteile:

- 1. Man kann mit ihnen nur einen begrenzten Energiebereich messen; bei 100 μ dicken Detektoren etwa bis 2.5 MeV.
- Dünne Detektoren stellen eine relativ große Eingangskapazität für die Vorverstärker dar, und dies bewirkt, daß ihr Rauschen und damit die energetische Auflösung des Systems verschlechtert wird.

Da das Konversionselement im ³He-Spektrometer gasförmig ist, liegt es nahe, das Gasvolumen zwischen den Halbleiterdetektoren als Proportionalzähler auszubilden und als dE/dx-Zähler zu betreiben. Infolge ihrer wesentlich geringeren spezifischen Ionisation werden Elektronen beim Durchqueren des Gasvolumens viel geringere Energieverluste erleiden als Protonen und Tritonen gleicher Energie. Eine Analyse der Proportionalzählerimpulse gestattet daher die Trennung von γ - und Neutronenspektrum im ³He-Spektrometer. Diese Methode hat den Vorteil, daß sie prinzipiell für jede Detektorstärke anwendbar ist, daß sie die Möglichkeit eröffnet, die Energieverluste der Reaktionsprodukte im Target zu korrigieren und einen Teil des Si(n, α)-Untergrunds zu diskriminieren.



b) Aufbau des Spektrometers

Abb.9 zeigt einen Schnitt durch das Spektrometer. Zwischen den beiden kreisförmigen, in Keramikringen (3) eingefaßten Si-Oberflächensperrschichtzählern (1) befindet sich der 36 u dicke Wolframdraht (2) des Proportionalzählers. Der Abstand zwischen den Detektoren ist hier etwa gleich ihrem Radius. Wesentlich größere Abstände führen zu einer zu großen Anzahl von Zählverlusten, während zu kleine Abstände die Energieauflösung des Zählrohres infolge richtungsabhängiger Multiplikation zu sehr verschlechtern. Um eine möglichst gleichmäßige Multiplikation über das gesamte empfindliche Spektrometervolumen zu erzielen, wird der Zähldraht am Rande durch einen 3x4 mm starken Kanal in den Al-Abstandsringen (9) zu den Kontakten (8) geführt. Die Wände des Proportionalzählers werden von den Aluminiumabstandsringen sowie den auf die Si-Detektoren und die Keramikringe aufgedampften Goldschichten gebildet. Die Spannungszufuhr der Halbleiterzähler geschieht über versilberte Kupferringe, die mittels Schrauben auf die rückwärtige Aluminiumkontaktschicht gepreßt werden. Typische Spektrometerdaten sind in Tabelle 2 zusammengestellt. Als Gasfüllung wurde kommerzielles, sehr reines ³He- bzw. ⁴He-Gas mit geringen Methanzusätzen verwendet.

Detektorfläche	Sperrschicht	Abstand	Gasfüllung
300 mm ²	200 µ	6 mm	2.5 atm ³ He + 1 cm HgCH ₄
300 mm ²	300 µ	8 mm	2 atm ³ He + 1 cm HgCH ₄
450 mm ²	400 μ	10 mm	2 atm ³ He + 1 cm H g CH ₄



Das Proportionalzählrohr wird bei relativ niedrigen Spannungen $(\approx 400 \text{ V})$, die jedoch bereits zu einer Multiplikation von 5-10 führen, betrieben. Dies hat seinen Grund in der relativ hohen Energie von 20 eV, die notwendig ist, um das niedrigste Energieniveau von He anzuregen. Elektronen können daher auf ihrem Weg zur Anode erst dann durch inelastische Stöße abgebremst werden, wenn ihre Energie mindestens 20 eV beträgt. Diese Energie ist aber bereits so groß, daß das nach dem Anregungsprozeß emittierte Photon mit großer Wahrscheinlichkeit Elektronen aus der Kathodenwand herauslösen kann, die sich am Multiplikationsprozeß beteiligen. Andererseits liegt diese Energie aber auch bereits sehr nahe bei der Ionisierungsenergie von 24 eV, so daß eine große Wahrscheinlichkeit besteht, daß auch diese Energie ohne inelastischen Stoß erreicht wird. Die Abhängigkeit der Multiplikation von der Zählrohrspannung zeigt Abb.10 für eine Spektrometerfüllung von 2.3 atm ³He. Die geringen Methanzusätze dienen zur Stabilisierung des Multiplikationsprozesses.

c) Das elektronische System des Spektrometers

Für die Analyse der Spektrometerimpulse mit dem Ziel, γ - und Neutronenspektrum voneinander zu trennen, gibt es drei Möglich-keiten:

 Man trennt γ-Impulse und Neutronenimpulse durch Einführung eines Einkanalanalysators im Proportionalzählerkreis. Da der Unterschied zwischen der spezifischen Ionisation der Elektronen und der Protonen und Tritonen derart groß ist, ist diese einfache Anordnung in einer Vielzahl von Fällen bereits mit gutem Erfolg anwendbar. Es kann jedoch passieren, daß bei dieser Schaltung sehr energiereiche Protonen, die das Spektrometer auf kürzestem Weg durchqueren, von energiearmen Elektronen, die im Spektrometer eine Gesamtenergie von mehr als 764 keV abgeben und das Gasvolumen auf langen Wegen durchfliegen, nicht mehr mit einer einzigen Diskriminatoreinstellung unterschieden werden können.



Dies kann entweder vermieden werden durch

- 2. eine zweiparametrige Analyse, wobei der eine Parameter der Proportionalzählerimpuls und der andere die Summe aller drei Detektorimpulse darstellt oder
- 3. durch eine Multiplikation der Proportionalzählerimpulse mit dem Summenimpuls und anschließende Analyse des Produkts mit einem Einkanalanalysator. Bei fast allen in dieser Arbeit beschriebenen Messungen wurde die 3. Lösung verwendet. Es ist offensichtlich, daß das Produkt der möglicherweise gleich großen Proportionalzählerimpulse eines sehr energiereichen Protons und eines relativ energiearmen Elektrons mit den Summenimpulsen des Spektrometers zu sehr unterschiedlichen Ergebnissen führen, so daß mit einer einzigen Diskriminatoreinstellung das gesamte Neutronenspektrum von 100 keV bis zu mehreren MeV ohne γ-Untergrund gemessen werden kann.

Abb.11 zeigt das Blockschaltbild des ³He-Spektrometers. Die Analyse der Halbleiterimpulse geschieht zunächst separat. Sie werden nach der Verstärkung in einem Additionsglied summiert und durch die schnelle Koinzidenzeinheit, die ein lineares Gate öffnet, auf koinzidente Impulse reduziert. In einem Stretcher wird dieser koinzidente Summenimpuls auf einige µsec gestreckt und anschließend in einem zweiten Additionsverstärker zu dem mit der richtigen Verstärkung versehenen koinzidenten Proportionalzählerimpuls addiert. Die Dreifachsumme geht einerseits zum Vielkanalanalysator, andererseits zu einem Eingang des Analogrechners⁵³. Der zweite Eingang des Analogrechners wird mit dem Proportionalzählerimpuls beschickt. Der Rechner wird nur tätig, wenn im Spektrometer ein Koinzidenzereignis registriert wurde. Das Produkt der beiden Rechnereingänge ist im allgemeinen wesentlich größer für Protonen-Tritonen-Paare als für Elektronen. Deshalb können die Protonen-Tritonen-Impulse in einem Einkanalanalysator von den Elektronenimpulsen getrennt werden. Die 10gischen Impulse des Einkanalanalysators werden auf mehrere usec gestreckt und anschließend auf den Koinzidenzeingang des Vielkanalanalysators gegeben.



Der Vorteil der zunächst separaten Behandlung der Halbleiterimpulse liegt darin, daß ihre gute Zeitauflösung voll genutzt werden kann und daß die Anzahl der Impulse durch die schnelle Koinzidenzschaltung bereits vor der Summation der Proportionalzählerimpulse bedeutend reduziert wird. Dadurch wird Pile-up zwischen den breiten Proportionalzählerimpulsen (Impulsformzeit 2 µsec) und den auf 3 µsec gestreckten aufaddierten Halbleiterimpulsen stark verringert.

In Abschnitt 2c) wurde gezeigt, daß die Einführung von Diskriminatorschwellen in die Detektorkreise starken Einfluß auf die geometrische Empfindlichkeit des Spektrometers hat. Mit aus diesem Grund wird man versuchen, die zur Erzeugung von zeitgebenden Impulsen stets notwendigen Schwellen so niedrig wie möglich zu machen, andererseits müssen sie aber auch einen genügenden Abstand zum elektronischen Rauschen besitzen. Es zeigt sich, daß die Höhe der Schwellen mindestens das Dreifache des mittleren Rauschens betragen muß, damit die Cross-Over-Einheiten nicht zu oft ausgelöst werden. Relativ kleine Impulse in der Nähe der Schwelle führen infolge von Time-Jitter zu einer schlechten Koinzidenzauflösung. Da der relative Anteil von kleinen Impulsen neutronenenergieabhängig ist, kann die Wahl einer zu kleinen Koinzidenzauflösungszeit zu einer schlecht erfaßbaren Beeinflussung der geometrischen Empfindlichkeit führen. Die minimal zulässige Auflösungszeit wurde daher mit einem Impulsgenerator in Gegenwart des Detektorrauschens ermittelt. Es zeigte sich, daß 200 nsec eine untere zulässige Grenze für die schnelle Koinzidenzeinheit sind. Daneben muß noch die Koinzidenzauflösung zwischen dem Proportionalzähler und den Halbleiterdetektoren ermittelt werden. Sie ist vor allem von Bedeutung für die Einstellung der Impulsdauer der Stretcher. Diese Koinzidenzauflösung war nicht besser als 3 usec infolge der unterschiedlichen Anstiegszeiten der Proportionalzählerimpulse.

Die Trennung von γ - und Neutronenimpulsen zeigt die Abb.12a) für das einfache System, bei dem der Rechner in Abb.11 fortgelassen wurde. Dargestellt ist die Impulshöhenverteilung des





Proportionalzählers gemessen in Koinzidenz mit den Halbleiterimpulsen, und zwar sowohl für thermische Neutronen als auch für das Spektrum einer Am-B-Quelle (obere Energie 5 MeV) in Gegenwart einer 5 mc Ra-y-Quelle. Man erkennt, daß die auf thermische Ereignisse zurückführbaren Impulse im Mittel größer sind als die von Am-B-Neutronen ausgelösten Impulse. Die Trennung zwischen Am-B-Neutronen und y-Untergrund ist jedoch noch zufriedenstellend. Abb.12b zeigt das Produkt der Proportionalzählerimpulse mit dem Gesamtimpuls am Ausgang des Rechners wiederum für thermische Neutronen und Neutronen einer ²⁵²Cf-Spaltquelle. Diesmal sind die Impulse der Cf-Quelle im Mittel größer als die Impulse, die von Reaktionen mit thermischen Neutronen herrühren. Die Trennung von y-Untergrund ist sowohl für thermische als auch für Spaltneutronen völlig ausreichend. Die Bedeutung der y-Diskriminierung für die Messung von Reaktorspektren zeigt Abb.13 für ein relativ großes Spektrometer. Dort ist die Impulshöhenverteilung im Vielkanalanalysator mit und ohne Anwendung der y-Diskriminierung aufgetragen. Ohne y-Diskriminierung wird das Neutronenspektrum völlig vom y-Spektrum überlagert.

d) Der Effekt von Pile-up für das beschriebene Spektrometersystem

Unter Pile-up versteht man die zufällige Überlagerung von Impulsen zu Ereignissen scheinbar höherer oder niedriger Energie. Im Zusammenhang mit Anwendungen des ³He-Spektrometers für die Messung von Reaktorspektren interessiert vor allem der Effekt von Pile-up zwischen neutroneninduzierten und γ -induzierten Impulsen. Zur Untersuchung des Pile-up-Effektes muß man den Einfluß mehrerer Zeitkonstanten des elektronischen Systems betrachten. Die Bedeutung dieser Zeitkonstanten für die Pile-up-Auflösungszeit hängt ab von der relativen Reihenfolge von falschen und wahren Ereignissen. Pile-up zwischen unkorrelierten Impulsen wird dann eintreten, wenn beide Impulse nicht mehr als die Koinzidenzauflösungszeit (200 nsec) voneinander getrennt sind, vorausgesetzt, daß die Impulsbreite größer ist als die Koinzidenzauflösungszeit, was gewöhnlich zutrifft. Diese Art von Pile-up, die mit großer Wahrscheinlichkeit nur zwischen sehr kleinen γ -Impulsen eintritt,





ist für das vorliegende Spektrometersystem von geringer Bedeutung. Folgt auf einen falschen Impuls in einem der drei Detektoren ein wahres koinzidentes Ereignis, so wird Pile-up eintreten, wenn dies innerhalb der Impulszerfallzeit des 1. Impulses geschieht. Da die y-Einzelzählrate in den Halbleitern sehr groß ist, sind hauptsächlich γ -Impulse an einer solchen Überlagerung beteiligt. Um diesen Effekt klein zu halten, ist es daher notwendig, die Impulsformzeiten möglichst klein zu wählen. Als günstig erwies sich eine Impulsformung mit doppelter Delaylinie und einer Integrationszeitkonstanten von 0.2 µsec, welches zu einem bipolaren Impuls mit etwa 0.5 µsec Breite führte. In Gegenwart eines hohen thermischen Untergrunds kann die Neutronenzählrate im Spektrometer sehr groß werden. Dies führt zunächst im Verstärker des Proportionalzählers, der notwendigerweise mit wesentlich größeren Zeitkonstanten (2 µsec) arbeiten muß, zu Pile-up. Bei noch höheren Zählraten wird dann auch Pile-up zwischen koinzidenten Impulsen und neutroneninduzierten Einzelimpulsen in den Halbleiterdetektoren eintreten. Folgt auf ein wahres koinzidentes Ereignis ein falscher Impuls, so wird ein Pile-up-Effekt eintreten, wenn der zweite Impuls innerhalb der Öffnungszeit des linearen Gates (1 µsec) eintritt und wenn seine Überlagerung zu einer größeren Impulshöhe führt.

Folgen schließlich zwei koinzidente Ereignisse aufeinander, so ist wiederum die Gatebreite die verantwortliche Zeitkonstante für Pile-up, denn auf die Öffnung des Gates folgt eine Totzeit, die gewöhnlich groß genug ist, um den 1. Impuls völlig abklingen zu lassen. Ein zweiter Impuls, der innerhalb dieser Totzeit eintritt, wird dann überhaupt nicht registriert.

Unter den Bedingungen, wie sie bei der Messung von Spektren in schnellen Reaktoren vorliegen, ist Pile-up mit γ -Impulsen nach den an zweiter und dritter Stelle genannten Mechanismen bei weitem am wichtigsten. Dieser Effekt führt zu einer Verbreiterung der Antwortfunktion an der hochenergetischen Seite wie Abb.14 zeigt. Da die Empfindlichkeit der ³He-Spektrometer jedoch relativ groß ist, ist es möglich, die zu messenden Anordnungen mit geringer Leistung zu betreiben, wodurch die Auswirkungen dieses Effekts auf die Spektrumsmessung vernachlässigbar werden.



Abb.14 Durch Pile-up Effekte verursachte Veränderungen der Antwortfunktion des Spektrometers auf monoenergetische (therm.) Neutronen

e) Energieeichung und energetische Auflösung des Spektrometers

Zur Energieeichung wurde auf die Innenwände des Spektrometers eine schwache U-233 α-Quelle gebracht, die außerdem mehrere a-strahlende Tochterkerne der Thoriumzerfallsreihe enthielt. Die Lage der α-Peaks wurde jeweils sowohl im evakuierten als auch im gefüllten Spektrometer mit beiden Halbleiterdetektoren gemessen. Aus der Kenntnis der Energie der a-Linien und der Lage des Nullpunkts läßt sich dann der Vielkanalanalysator in keV/Kanal eichen. Mittels dieser Energieeichung kann man die Lage (Kanalnummer) des thermischen Peaks im ³He-Spektrometer berechnen. Nach Bildung der Dreifachsumme im Spektrometer wird dann die Verstärkung des Proportionalzählers so lange verändert, bis die gemessene Lage des Peaks mit der berechneten übereinstimmt. An Stelle der U-233- α -Quelle ist es auch möglich, für die Energieeichung den a,t- und Summenpeak eines ⁶Li-Spektrometers zu verwenden. Man muß hierbei jedoch darauf achten, daß die Ladungssammlung in den Detektoren des ⁶Li-Spektrometers vollständig ist und daß ihre Kapazität nicht zu sehr von der Kapazität der Detektoren des ³He-Spektrometers abweicht.

Welche große Verbesserung der energetischen Auflösung des Spektrometers durch die richtige Addition der Proportionalzählerimpulse erreicht werden kann, zeigt die Abb.15 für senkrecht zur Spektrometerachse eintretende monoenergetische Neutronen von 593 keV. Die Halbwertsbreite des Peaks verbessert sich nach Zuschalten des Proportionalzählers von 212 keV auf etwa 62 keV. Ohne Proportionalzähler ist das Maximum der Linie natürlich auch um einen gewissen Betrag gegenüber dem theoretischen Energiewert verschoben.

Es sei darauf hingewiesen, daß es nicht möglich ist, die Energieauflösung des ³He-Spektrometers mit thermischen Neutronen zu testen, da in diesem Fall Ereignisse, bei denen das Triton sehr viel Energie verloren hat, infolge der Diskriminatorschwellen in den Cross-Over-Einheiten sowieso nicht nachgewiesen werden. Für das in Abb.15 verwendete Spektrometer ergab sich mit thermischen Neutronen auch ohne Zuschaltung des Proportional-



Abb.15 Antwortfunktion des Spektrometers auf monoenergetische Neutronen mit und ohne Energieverlustkorrektur

Abb.16 Koinzidenzzählrate der Cross Over Einheiten in Gegenwart des Detektorrauschens als Funktion der Impulshöhe

zählers eine Halbwertsbreite von etwa 100 keV für den Summenpeak.

4) Bestimmung der geometrischen Empfindlichkeit des Spektrometers

a) Faktoren, die die geometrische Empfindlichkeit beeinflussen

Man findet in der Literatur eine große Zahl von Arbeiten zur Berechnung der geometrischen Empfindlichkeit von Halbleitersandwichspektrometern^{16,51,54-56}. Dennoch sind die dort verwendeten Modelle nicht direkt auf das vorliegende ³He-Spektrometer anwendbar. Sofern sie überhaupt exakt die Geometrie des Spektrometers berücksichtigen^{16,54,56}, sind sie zu speziell auf ⁶Li-Spektrometer zugeschnitten und berücksichtigen weder die endliche axiale Ausdehnung des Targets noch die Energieverluste der Reaktionsprodukte. Beides hat zwar bei ⁶Li-Spektrometern keinen Einfluß auf die geometrische Empfindlichkeit, dies gilt jedoch nicht mehr für ³He-Spektrometer. In ⁵⁵ wird zwar die geometrische Empfindlichkeit eines ³He-Spektrometers für senkrecht und parallel zur Achse einfallende Neutronen unter Berücksichtigung der Ausdehnung des Targets, nicht jedoch unter Berücksichtigung der Abbremsung der Teilchen berechnet, was für das vorliegende Spektrometer zu unbrauchbaren Ergebnissen führt. Neben der Winkel- und Energieverteilung der Reaktionsprodukte bestimmen vor allem die Geometrie (Abstand und Ausdehnung der Detektoren) des Spektrometers, der Gasdruck sowie die Diskriminatorschwellen in der Halbleiterelektronik die geometrische Empfindlichkeit. Dabei ist es wichtig, den exakten physikalischen Verlauf der Diskriminatorschwellen zu erfassen, der mit Hilfe eines Impulsgenerators in Gegenwart des Detektorrauschens gemessen werden kann (Abb.16). Ferner ist es wichtig, den Energieverlust der Reaktionsprodukte möglichst genau durch Integration über die gesamte im Spektrometer zurückgelegte Strecke zu berücksichtigen.

b) Berechnung der geometrischen Empfindlichkeit

Bei der Berechnung der geometrischen Empfindlichkeit des Spektrometers für Neutronenfelder $\Phi(\vartheta, \overline{\Phi})$ mit beliebiger Winkelverteilung setzen wir voraus, daß diese Winkelverteilung an jedem Ort des empfindlichen Volumens gleich ist und daß sich die Intensität des Neutronenflusses über den Ort des Spektrometers nicht ändert. Beide Voraussetzungen sind zum Beispiel bei der Messung eines Quellspektrums verletzt, wenn der Abstand zur Quelle den Spektrometerdimensionen vergleichbar wird. Sie sind außerdem verletzt in Neutronenfeldern mit starkem Gradienten. Sie sind jedoch meistens bei der Messung von Reaktorspektren erfüllt.

Abb.17 zeigt ein geometrisches Modell der im Spektrometer stattfindenden Vorgänge. Das Neutron tritt mit der Flugrichtung \vec{n} in das Spektrometer ein und löst eine Reaktion am Ort $\vec{r}(\rho, z, \delta)$ im Gasvolumen aus; das dabei entstandene Proton fliegt in Richtung \vec{p} weiter und wird im Detektor 1 nachgewiesen, falls der Abstand Ap seines Durchstoßpunkts in der Detektorebene von der Spektrometerachse kleiner als der Detektorradius ist und falls seine Energieverluste nicht zu groß waren, so daß die Restenergie noch größer als die Diskriminatorschwelle ist. Entsprechendes gilt für das Triton. Für die einfache Formulierung der Emissionswahrscheinlichkeiten ist die Wahl des Koordinatensystems von entscheidender Bedeutung. Das hier gewählte Koordinatensystem ist identisch mit dem auch bei der Berechnung der geometrischen Empfindlichkeit von ⁶Li-Spektrometern verwendeten Gauß'schen System¹⁶. Eine Achse dieses Koordinatensystems ist identisch mit der Neutronenflugrichtung n. Die anderen Achsen entstehen auf folgende Weise: n, entsteht durch Projektion von ñ über p auf die Ebene senkrecht zu \vec{n} . \overline{y} steht senkrecht auf \vec{n} und n_{\perp} . Die Knotenlinie K liegt in der Reaktionsebene und steht senkrecht auf der von \vec{n} und z' aufgespannten Ebene. Für die Berechnung der geometrischen Empfindlichkeit werden nun die folgenden Wahrscheinlichkeiten definiert:



$$p_{r}(\rho, z, \delta) d\rho dz d\delta = Wahrscheinlichkeit, daß eine Reaktionam Ort $\vec{r}(\rho, z, \delta)$ im empfindlichen Volu-
men des Spektrometers stattfindet
$$= \frac{\rho d\rho dz d\delta}{\pi R^{2} \cdot 1}$$$$

 $p_n(\eta, \overline{\phi})d \cos \eta d\overline{\phi} =$ Wahrscheinlichkeit, daß ein Neutron mit einer Flugrichtung, die durch den Winkel η gegen die Spektrometerachse und den Winkel $\overline{\phi}$ zwischen x'Achse und Knotenlinie K beschrieben werden kann, in das Spektrometer eintritt; in einer isotropen Flußverteilung = $\frac{1}{4\pi} \sin \eta d\eta d\overline{\phi}$

 $p_e(\tilde{\vartheta}, \bar{\psi})d \cos \tilde{\vartheta} d\bar{\psi} = Wahrscheinlichkeit, daß das Proton im$ $Schwerpunktsystem in einen durch <math>\tilde{\vartheta}$ und $\bar{\psi}$ gegebenen Raumwinkel gegen die Richtung des Neutrons emittiert wird; für isotrope Streuung: $\frac{1}{4\pi} \sin \tilde{\vartheta} d\bar{\vartheta} d\bar{\psi}$

$$\begin{split} p_{p}(\vec{r},n,\bar{\Phi},\widetilde{\vartheta},\vec{\psi},E_{n},E_{d},R_{d},1,P) &= \text{Wahrscheinlichkeit mit der das Proton in einem Detektor nachgewiesen wird.} \\ & \text{Falls die Restenergie } E_{rp} \text{ des Protons unterhalb einer unteren Energieschwelle } E_{d_{u}} \\ & \text{bleibt: 0, falls sie oberhalb einer oberen } \\ & \text{Energiegrenze } E_{d_{0}} \text{ bleibt: 1} \\ & \text{Falls } E_{d_{u}} = E_{rp} = E_{d_{0}} \text{ : } p_{p} = p_{p} (E_{rp}) \text{ gemäß } \\ & \text{Abb.16} \\ & (P=Gasdruck) \\ p_{t}(\vec{r},n,\bar{\Phi},\tilde{\vartheta},\bar{\psi},E_{n},E_{d},R_{d},1,P) = Wahrscheinlichkeit, daß das Triton \end{split}$$

im anderen Detektor nachgewiesen wird.

Mit diesen Definitionen läßt sich die geometrische Empfindlichkeit schreiben:

$$\varepsilon_{g}(E_{n}, E_{d}, R, 1, P) = \left(p_{n}(\eta, \overline{\Phi}) \operatorname{singd} \eta d\overline{\Phi} \right) \left(p_{r}(\rho, z, \delta) d\rho dz d\delta \right) \left(p_{e}(\tilde{\vartheta}, \overline{\psi}) p_{t} p_{p} \operatorname{sin} \tilde{\vartheta} d\tilde{\vartheta} d\overline{\psi} \right) \\ 0 0 \qquad 000 \qquad 0000 \qquad 000 \qquad 000 \qquad 000 \qquad 000 \qquad 000 \qquad 000$$

Zur Berechnung der Wahrscheinlichkeiten p_t und p_p ist es zunächst notwendig, eine Transformation vom $\overline{n}, n_{\perp}, \overline{y}$ - auf das x,y,z-Koordinatensystem durchzuführen. Dies geschieht mit Hilfe der folgenden Transformationsmatrix⁵⁷:

 $A^{-1} = \begin{pmatrix} \cos\overline{\psi} \cdot \cos\overline{\Phi} - \cos\eta \cdot \sin\overline{\psi} \cdot \sin\overline{\psi} , -\sin\overline{\psi} \cdot \cos\overline{\Phi} - \cos\eta \cdot \sin\overline{\Phi} \cdot \cos\overline{\psi}, \sin\eta \cdot \sin\overline{\Phi} \\ \cos\overline{\psi} \cdot \sin\overline{\Phi} + \cos\eta \cdot \cos\overline{\Phi} \cdot \sin\overline{\psi} , -\sin\overline{\psi} \cdot \sin\overline{\Phi} + \cos\eta \cdot \cos\overline{\Phi} \cdot \cos\overline{\psi}, -\sin\eta \cdot \cos\overline{\Phi} \\ \sin\eta \cdot \sin\overline{\psi} , \sin\eta \cdot \cos\overline{\psi} , \cos\eta \end{pmatrix}$

Der Zusammenhang zwischen der Beschreibung eines Vektors \overline{a}_{L} im Laborsystem und der Beschreibung desselben Vektors \overline{a} im $\overline{\eta}, n_{L}, \overline{y}$ -System ist dann gegeben durch $\overline{a}_{L} = A^{-1}$. \overline{a} .

Wir erhalten insbesondere für die Vektoren $\vec{t} = \begin{pmatrix} \cos \phi_t & \sin \phi \\ \sin \phi_t & \sin \phi \\ \cos \phi \end{pmatrix}$ und $\vec{p} = \begin{pmatrix} \cos \phi_p & \sin \chi \\ \sin \phi_p & \sin \chi \\ \sin \phi_p & \sin \chi \\ \cos \chi \end{pmatrix}$

$$\begin{split} \cos \Phi_{t} & \sin \phi = \sin \alpha_{L} (\cos \overline{\phi} - \cos \overline{\phi} - \cos \eta \ \sin \overline{\phi} \ \sin \overline{\phi}) + \cos \alpha_{L} \sin \eta \ \sin \overline{\phi} = t_{1} \\ \sin \Phi_{t} & \sin \phi = \sin \alpha_{L} (\cos \overline{\phi} \ \sin \overline{\phi} + \cos \eta \ \cos \overline{\phi} \ \sin \overline{\phi}) - \cos \alpha_{L} \sin \eta \ \cos \overline{\phi} = t_{2} \\ & \cos \phi \ = \ \sin \alpha_{L} \ \sin \eta \ \sin \overline{\phi} \ + \ \cos \alpha_{L} \ \cos \eta \\ & \cos \Phi_{p} \sin \chi = -\sin \theta_{L} (\cos \overline{\phi} \ \cos \overline{\phi} - \cos \eta \ \sin \overline{\phi} \ \sin \overline{\phi}) + \cos \theta_{L} \sin \eta \ \sin \overline{\phi} = p_{1} \\ & \sin \Phi_{p} \sin \chi = -\sin \theta_{L} (\cos \overline{\phi} \ \sin \overline{\phi} + \cos \eta \ \cos \overline{\phi} \ \sin \overline{\phi}) - \cos \theta_{L} \sin \eta \ \cos \overline{\phi} = p_{2} \\ & \cos \chi \ = \ -\sin \theta_{L} \ \sin \eta \ \sin \overline{\phi} \ + \ \cos \theta_{L} \ \cos \eta \end{split}$$

Nach der Herstellung dieses Zusammenhanges ist es möglich, die Größen Δ_{t} und Δ_{p} mit Hilfe der Winkel $\overline{\Phi}, \overline{\psi}, \eta$ auszudrücken:

$$\Delta_{t} = \begin{bmatrix} \rho^{2} + 2\rho & \frac{z}{\cos\psi} & \cos\delta \cdot t_{1} + \sin\delta t_{2} & + \frac{z^{2}}{\cos^{2}\psi} - z^{2} & \text{für } \cos\psi = 0 \end{bmatrix}$$

$$\Delta_{p} = \begin{bmatrix} \rho^{2} + 2\rho & \frac{z}{\cos\chi} & \cos\delta \cdot p_{1} + \sin\delta p_{2} & + \frac{z^{2}}{\cos^{2}\chi} - z^{2} & \text{für } \cos\chi = 0 \end{bmatrix}$$

$$\Delta_{t} = \begin{bmatrix} \rho^{2} + 2\rho & \frac{(1-z)}{\cos\psi} & \cos\delta \cdot t_{1} + \sin\delta t_{2} & + \frac{(1-z)^{2}}{\cos^{2}\psi} - (1-z)^{2} & \text{für } \cos\psi = 0 \end{bmatrix}$$

$$\Delta_{p} = \begin{bmatrix} \rho^{2} + 2\rho & \frac{(1-z)}{\cos\psi} & \cos\delta \cdot p_{1} + \sin\delta p_{2} & + \frac{(1-z)^{2}}{\cos^{2}\chi} - (1-z)^{2} & \text{für } \cos\chi = 0 \end{bmatrix}$$

Der Zusammenhang zwischen den Winkeln ϑ_L und α_L und dem Winkel $\tilde{\vartheta}$ im Schwerpunktsystem wurde bereits in Abschnitt 2c), Formel 1, angegeben. Weiterhin benötigt man für eine Berechnung von pp und pt noch die Anfangsenergien Ep und Et der Reaktionsprodukte sowie ihre Flugwege

 $l_p = \frac{1-z}{\cos\chi} \quad \text{oder} \quad \frac{z}{\cos\chi} \quad \text{und} \quad l_t = \frac{1-z}{\cos\psi} \quad \text{oder} \quad \frac{z}{\cos\psi} \quad .$

Die Lösung des Integrals (9) ist vor allem für zwei in der Praxis besonders häufige Probleme interessant:

1. Ein paralleles Neutronenstrahlbündel tritt unter einem Winkel n gegen die Achse in das Spektrometer ein. In diesem Fall vereinfacht sich das Integral (9) auf das fünffache Integral:

$$\varepsilon_{g}(\eta, E_{n}, E_{d}, R, 1, P) = \underbrace{\begin{cases} 2\pi \eta \\ p_{r}(\rho, z, \delta) d\rho dz d\delta \\ 0 0 0 \end{cases}}_{0 0} \underbrace{p_{e}(\tilde{\vartheta}, \bar{\psi}) p_{t} p_{p} \sin \tilde{\vartheta} d\tilde{\vartheta} d\bar{\psi}}_{0 0} (10)$$

2. Das Spektrometer befindet sich in einem zu seiner Achse rotationssymmetrischen Neutronenfeld $p_n(\eta)$. In diesem Fall ist der Integrand eine Funktion $F(\cos(\bar{\Phi}-\delta)\sin(\bar{\Phi}-\delta))$, die also nur von $\bar{\Phi}-\delta$ abhängt und 2π periodisch ist. Man kann daher entweder $\bar{\Phi}$ oder δ konstant setzen und die Integration über die konstant gesetzte Variable ausführen:

$$\varepsilon_{g}(E_{n}, E_{d}, R, 1, P) = 2\pi \int_{0}^{\pi} p_{n}(\eta) \varepsilon_{g}(\eta) \sin \eta \, d\eta$$
(11)

Die numerische Berechnung der Integrale 10 und 11 läßt sich mit genügender Genauigkeit nur mit Hilfe der Monte-Carlo-Methode ausführen. Dazu muß das Integral zunächst umgeformt werden. Wir setzen $\rho' = \frac{\rho}{R}$, $z' = \frac{z}{1}$ und berücksichtigen, daß p_e nicht von $\overline{\psi}$ abhängt.

$$\varepsilon_{g}(E_{\eta},\eta) = \iiint_{0} \rho' d\rho' d'z' \frac{2d\delta}{2\pi} \iint_{0} p_{e}(\tilde{\vartheta}) \sin\tilde{\vartheta} p_{t} p_{p} \frac{\pi d\tilde{\vartheta}}{\pi} \frac{d\tilde{\psi}}{2\pi}$$

$$= 2\pi \lim_{N \to \infty} \{\lim_{i=1}^{N} \sum_{j=1}^{N} \rho_{j} p_{e}(\tilde{\vartheta}_{j}) \sin\tilde{\vartheta}_{j} p_{t}(\rho_{j}' z_{j}' \delta_{j}' \tilde{\vartheta}_{j}' \tilde{\psi}_{j}' R_{d}' R_{l} P_{i} E_{n'} E_{d}) p_{p}(\dots) \}$$
(12)

und für das Integral (11) erhalten wir entsprechend

$$\varepsilon_{g}(E_{n}) = 2\pi^{2} \lim_{N \to \infty} \left\{ \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} \rho_{i} p_{n}(\eta_{i}) \sin \eta_{i} p_{e}(\vartheta_{i}) \sin \vartheta_{i} p_{t} p_{p} \right\}$$
(13)

Der logische Gang der Berechnung ist aus folgendem Schema erkennbar:

Zunächst werden mit Hilfe eines Zufallszahlengenerators die Größen $\rho_i, z_i, \delta_i, \tilde{\vartheta}_i, \bar{\psi}_i$ ermittelt und damit die Größen $\cos \psi$, $\cos \chi, \Lambda_t, \Lambda_p, l_z, l_p$ berechnet.

1. Fall:
$$\cos \phi = 0$$



<u>2. Fall</u>: $\cos \phi \ge 0$



c) Fehlerabschätzung

Bezeichnen wir den wahren Wert des Integrals (12) mit ε_g und den mit einer endlichen Anzahl N von Versuchen ermittelten Näherungswert mit $\overline{\varepsilon}_{g}$, so gilt die Beziehung⁵⁸

$$p(|\overline{\epsilon}_{g}-\epsilon_{g}| < \sigma^{*} t_{a}) = a$$
(14)

In Worten: Die Wahrscheinlichkeit, daß $|\bar{\epsilon}_{g} - \epsilon_{g}| < \sigma^{*} t_{a}$, ist gleich a.

Dabei bedeuten

$$\sigma^{*} = \frac{\sigma_{\varepsilon}}{\sqrt{N}}, \sigma_{\varepsilon}^{2} = \iiint \left[2\pi\rho' p_{e}(\tilde{\vartheta}) \sin\tilde{\vartheta} p_{t} p_{p} - \varepsilon_{g} \right]^{2} \frac{1}{4\pi^{3}} d\tilde{\vartheta} d\psi d\rho' dz' d\delta$$

 t_a ist gleich der Größe des kritischen Intervalls, das zu der vorgegebenen statistischen Sicherheit a aus den Tabellen für die Normalverteilung entnommen werden kann. (a=0.683, t_a =1; a=0.955, t_a =2 usw.) Da die Dispersion σ_{ϵ} gewöhnlich unbekannt ist, muß für die Fehlerabschätzung ein Näherungswert verwendet werden. Diesen gewinnt man durch Einsetzen des Näherungswertes $\bar{\epsilon}_g$ in die Formel für σ_{ϵ}^2 und Berechnung des Integrals nach der beschriebenen Methode:

$$\sigma_{\varepsilon}^{2} = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^{N} \sum_{i=1}^{N} \sum_{j=1}^{2\pi} \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{N} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{e} (\tilde{\vartheta}_{j}) \sin \tilde{\vartheta}_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{j} p_{j} p_{t} p_{p} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N} 2\pi \rho_{j} p_{j} p_{j}$$

Mit modernen Rechenmaschinen (IBM 370/165) ist es möglich, ε_g für 10 Neutronenenergien bei einer Versuchszahl von 30000 in etwa 3 Minuten zu berechnen. Die dabei erzielte Genauigkeit beträgt für a = 0.683 etwa 3%.

d) Berechnung der Emissionswahrscheinlichkeit p_e $(\tilde{\mathfrak{d}})$

Die Emissionswahrscheinlichkeit $p_e(\tilde{\vartheta})$ muß gemäß Formel 4, Abschnitt 2c), aus dem differentiellen Wirkungsquerschnitt der ³He(n,p)t-Reaktion berechnet werden. Leider gibt es nur sehr wenige direkte Messungen des differentiellen Wirkungsquerschnitts, und man ist daher gezwungen, die Winkelverteilung der Reaktionsprodukte aus den gut bekannten differentiellen Wirkungsquerschnitten der Umkehrreaktion^{59,60} zu berechnen. Nach dem Prinzip des detaillierten Gleichgewichts existiert zwischen dem differentiellen Wirkungsquerschnitt der Kernreaktion I+II-1+2 und dem dazu umgekehrten Prozeß 1+2-I+II die folgende Relation:

$$\frac{\sigma_{I,II}}{\sigma_{I,2}} = \frac{(2J_1+1) (2J_2+1)p_1^2}{(2J_1+1) (2J_{II}+1)p_1^2}$$
(15)

Mit J werden hier die Spins der Teilchen bezeichnet; p sind ihre Impulse im Schwerpunktsystem. Im Schwerpunktsystem müssen die Impulse der Teilchen I und II aus der direkten und die Impulse der Teilchen 1 und 2 aus der umgekehrten Reaktion ein und derselben Gesamtenergie entsprechen. Aus dieser Bedingung folgt eine Beziehung zwischen den kinetischen Energien der Geschoßteilchen von direkter und umgekehrter Reaktion im Laborsystem: Wir nehmen an, daß bei der direkten Reaktion das Teilchen II und bei der umgekehrten Reaktion das Teilchen 2 ruht, dann gilt:

$$E_1 = \frac{m_{II}}{m_2} E_I + \frac{M}{m_2} Q$$
; $M = m_1 + m_2 = m_I + m_{II}$

Insbesondere gelten für die T(p,n)³He-Reaktion und ihre Inverse:

$$E_n = E_p - \frac{4}{3} Q$$
 (16)

Die Winkelverteilung der ³He(n,p)t-Reaktion läßt sich mit Hilfe der Relation 16 direkt aus der gemessenen Winkelverteilung der Umkehrreaktion ablesen. Man muß nur den Winkel $\tilde{\vartheta}_n$ in $\tilde{\vartheta}_p$ umbenennen In 60 sind die Koeffizienten B_i einer Entwicklung der Winkelverteilung nach Legendrepolynomen angegeben. Verwenden wir diese, so gilt für die auf 1 normierte Winkelverteilung:

$$P_{e}(\tilde{\vartheta}_{p})d\cos\tilde{\vartheta}_{p} = \frac{\sum B_{i}P_{i}(\cos\tilde{\vartheta}_{p})}{2B_{o}}$$

Die Winkelverteilung der Protonen im Schwerpunktsystem ist stark rückwärts gerichtet, die zugehörige Tritonenenergie also maximal, was einen günstigen Einfluß auf die geometrische Empfindlichkeit des Spektrometers hat (s.u.).

e) Empfindlichkeit des Spektrometers als Funktion des ³He-Gasdrucks und der Spektrometerdimensionen

Zunächst wurde die geometrische Empfindlichkeit des Spektrometers als Funktion der Neutronenenergie für verschiedene Gasdrucke und Detektorabstände untersucht. Einige der Ergebnisse sind in Abb.18 zusammengestellt. Für diese Rechnungen wurde eine sehr niedrige stufenförmige Diskriminatorschwelle von 30 keV verwendet. Ohne Energieverluste der Reaktionsprodukte im Target hätte diese Schwelle erst einen Einfluß für Neutronenengien größer als 1 MeV. Die Unterschiede der geometrischen Empfindlichkeiten bei verschiedenen Gasdrucken aber gleichen Detektorabständen, sind daher allein auf Energieverluste im Target zurückzuführen. Man erkennt, daß dieser Einfluß zu kleinen Neutronenenergien stark anwächst. Die Energieverluste der Reaktionsprodukte haben auch einen bedeutenden Einfluß auf die geometrische Empfindlichkeit des zu Messungen häufig verwendeten kommerziell erhältlichen Spektrometers mit 1 mm Detektorabstand^{20,21,23}. Korrekturen, die bisher in der Literatur für dieses Spektrometer vorgeschlagen wurden^{51,55,56}, sind daher unbrauchbar. Abb.18 zeigt auch, daß es zu jedem Detektorabstand einen ³He-Gasdruck gibt, für den die geometrische Empfindlichkeit einen nahezu konstanten Verlauf besitzt. Dieser Druck hängt natürlich auch von der Höhe der Diskriminatorschwelle ab. Da jedoch häufig größerer Wert auf eine hohe absolute Empfindlichkeit bei höheren Neutronenenergien gelegt werden muß, ist es nicht immer möglich, diesen unter dem Gesichtspunkt der Korrektur optimalen Druck zu wählen.

Aus den in Abschnitt 3b) erläuterten Gründen darf der Detektorabstand nicht wesentlich geringer als der Detektorradius werden.





Das bedeutet für die in dieser Arbeit verwendeten Detektoren etwa 0.5 bis 1 cm. In Abb.19 oben ist die Abhängigkeit der absoluten Empfindlichkeit (E $\sim \epsilon_{\rm q} \, \cdot \, {\rm l} \, \cdot \, {\rm p})$ des Spektrometers vom Gasdruck für verschiedene Detektorabstände dargestellt. Man erkennt, daß die Empfindlichkeit bei 5 mm Detektorabstand für Drucke oberhalb 2 atm nicht mehr linear anwächst und daß sie für sehr kleine Neutronenenergien oberhalb 2 atm vorübergehend einen konstanten Wert annimmt und schließlich bei 10 atm wieder auf Null absinkt. Für 1=10 mm und Neutronenenergien von 1 MeV wird das Maximum der Empfindlichkeit bei etwa 6 atm erreicht. Die Energieverlustverteilungen (= Antwortfunktionen des Spektrometers auf monoenergetische Neutronen bei Verzicht auf Korrektur der Energieverluste mit Proportionalzähler) erreichen für thermische Neutronen sehr schnell eine Form mit konstanter Halbwertsbreite, wohingegen die Halbwertsbreite dieser Verteilung für 1 MeV Neutronen stark anwächst.

Ähnliche Auswirkungen auf die Empfindlichkeit wie eine Erhöhung des Gasdrucks bei konstantem Detektorabstand hat auch eine Vergrößerung des Detektorabstands bei konstantem Gasdruck. Hier summieren sich jedoch zwei Effekte, denn einmal werden durch eine Vergrößerung des Detektorabstands die rein geometrischen Bedingungen des Koinzidenznachweises der Reaktionsprodukte verschlechtert, zum anderen wachsen die Gasschichten, die von den Teilchen durchquert werden müssen, und folglich auch die Absorptionsverluste an. Man erkennt aus Abb.20, daß die geometrische Empfindlichkeit mit wachsendem Detektorabstand exponentiell abnimmt, während die absolute Empfindlichkeit zunächst bis zu einem maximalen Wert anwächst und schließlich gleichfalls abfällt. Die Lage und die Höhe des Maximums hängt vom Gasdruck, den Diskriminatorschwellen und der Neutronenenergie ab.

In Abb.21 ist die geometrische Empfindlichkeit in einer isotropen Neutronenflußverteilung für isotrope und anisotrope Streuung im Schwerpunktsystem berechnet worden. Aus dem Ver -



Abb.20 Geometrische und absolute Empfindlichkeit als Funktion des Detektorabstands für verschiedene Gasdrucke und Diskriminatorschwellen



Abb.21 Geometrische Empfindlichkeit als Funktion der Neutronenenergie für isotrope und anisotrope Streuung im Schwerpunktsystem (isotrope Flußverteilung)

hältnis der beiden Empfindlichkeiten erkennt man, daß der relative Verlauf beider Empfindlichkeiten oberhalb 200 keV um nicht mehr als $\pm 3\%$ voneinander abweicht. Der absolute Betrag der anisotropen Empfindlichkeit liegt jedoch maximal 12% höher, was seinen Grund in der bevorzugten rückwärtigen Emission der Protonen hat. Abb. 22 zeigt schließlich die geometrische Empfindlichkeit für senkrecht und parallel zur Spektrometerachse einfallende Neutronenstrahlbündel sowie für eine isotrope und eine stark anisotrope Neutronenflußverteilung. Die anisotrope Verteilung wurde einer eindimensionalen Sn-Rechnung des im 2. Teil der Arbeit beschriebenen Uranblocks entnommen. Der Grad der Anisotropie ist energieabhängig und für zwei Neutronenenergien von 581 keV und 3.481 MeV in Abb.22 unten eingezeichnet. Der Unterschied der geometrischen Empfindlichkeiten ist trotz der überwiegenden Vorwärtskomponente der Flußverteilung gering. Dies hat seinen Grund darin, daß das Spektrometer Neutronen, die mit einem Winkel η oder 180⁰- η zu seiner Achse eintreten, nicht unterscheidet. Lediglich die Summe der Winkelflüsse $\Phi(\eta) + \Phi(180^{\circ} - \eta)$ hat einen Einfluß auf die Höhe und den Verlauf der geometrischen Empfindlichkeit. Nur wenn diese Summe stark von n abhängt, ist die Differenz zwischen den Empfindlichkeiten in isotroper und anisotroper Flußverteilung bedeutend. Die schwache Abhängigkeit der geometrischen Empfindlichkeit von der Anisotropie der Streuung im Schwerpunktsystem und der Anisotropie der Neutronenflußverteilung bewirkt, daß die Genauigkeit des Spektrometers nur in geringem Maße von der exakten Kenntnis dieser Daten abhängt.

f) Energieverlustverteilung der Reaktionsprodukte

Abb.23 zeigt Energieverlustverteilungen in Abhängigkeit von der Neutronenenergie für eine isotrope Neutronenflußverteilung sowie für parallel und senkrecht zur Spektrometerachse einfallende Neutronenstrahlbündel. Die Energieverlustverteilungen sind so normiert, daß das Integral über die Verteilung gleich der geometrischen Empfindlichkeit wird. In der Abbildung sind auch die theoretischen Energiewerte E_n+Q eingezeichnet, bei denen



<u>Abb.22</u> Geometrische Empfindlichkeit als Funktion der Neutronenenergie für senkrecht und parallel zur Spektrometerachse einfallende Neutronenstrahlbündel sowie für isotrope und anisotrope Flußverteilungen



Abb.23 Energieverlustverteilungen in einem ³He-Spektrometer für verschiedene Neutronenenergien

die Peaks erscheinen müßten, wenn keine Energieverluste der Reaktionsprodukte stattfänden. Man erkennt, daß der Abstand zwischen den theoretischen Energiewerten und den Maxima der Peaks mit wachsender Neutronenergie abnimmt, auch wird die Halbwertsbreite der Verteilungen mit wachsender Energie immer geringer. Diese Tatsachen führen in einem nicht korrigierenden Spektrometer zu einer unlinearen Energieskala und einer energieabhängigen Antwortmatrix, welches vor allen Dingen für die Interpretation von Spektren unterhalb etwa 1 MeV Neutronenenergie von großer Bedeutung sein kann. Abb.23 zeigt auch, daß die Energieverlustverteilung für senkrecht zur Spektrometerachse einfallende Neutronen wesentlich breiter ist als für parallel zur Achse eintretende Neutronen. Dies hat seinen Grund darin, daß bei parallel zur Achse einfallenden Neutronen hauptsächlich solche Ereignisse registriert werden, bei denen die Tritonen in einem kleinen Raumwinkel um die Neutronenflugrichtung emittiert werden. Bei senkrecht zur Spektrometerachse eintretenden Neutronen ist die Streuung der Flugwege der Reaktionsprodukte groß, da nur Ereignisse nachgewiesen werden, bei denen mindestens eines der Teilchen einen relativ großen Winkel mit der Spektrometerachse bildet. Außerdem ist die Streuung der Anfangsenergien der Teilchen sehr groß. Beides zusammen bewirkt die breite Energieverlustverteilung in Abb.23 unten.

g) Bemerkungen zur Optimalisierung des Spektrometers

Für eine Optimalisierung des Spektrometers sind Empfindlichkeit, energetisches Auflösungsvermögen und Vollständigkeit der γ -Diskriminierung zu betrachten. Das Auflösungsvermögen wird zu einem wesentlichen Teil von den Eigenschaften des Proportionalzählers bestimmt, d.h. durch die Vollkommenheit, mit der es gelingt, die Energieverluste der Reaktionsprodukte im Gas zu korrigieren. Um eine möglichst zylindersymmetrische Feldverteilung um den Zähldraht zu erreichen, darf daher das Verhältnis von Abstand zu Radius der Detektoren nicht wesentlich von 1 abweichen. Dies ist auch notwendig, um ein gutes zeit-

liches Auflösungsvermögen mit dem Proportionalzähler zu erzielen. Weiterhin wird diese Relation nahegelegt durch die Überlegung, daß das Verhältnis von kleinstem zu größtem Weg, auf dem ein Teilchen den Zwischenraum zwischen den Detektoren durchqueren kann, nicht zu klein und daher der Unterschied der Energieverluste nicht zu groß werden darf, was die Möglichkeit der y-Diskriminierung beeinträchtigen würde. Ist durch diese qualitativen Überlegungen die Größenordnung des Abstands der Detektoren festgelegt, so kann man mit Hilfe der in Abb.19 und 20 dargestellten Rechnungen den für eine optimale Empfindlichkeit notwendigen Druck und Detektorabstand genauer bestimmen. Dabei ist zu berücksichtigen, daß der Druck für $l \approx 10$ mm unterhalb 4 atm bleiben muß, um thermische Neutronen nicht vollständig zu unterdrücken (Abb.19). (Man wird auf die Registrierung von Reaktionen mit thermischen Neutronen aus Gründen der schnellen Reproduzierbarkeit der Energieeichung nicht verzichten.) Aus Abb.20 liest man ab, daß für 4 atm Druck und Neutronenengien von 2 MeV die maximale Empfindlichkeit tatsächlich für einen Abstand von 5-10 mm erreicht wird. Abb.19 rechts zeigt wiederum, daß der Druck von 4 atm für MeV Neutronen bei 10 mm Abstand gleichfalls nahezu optimal ist.

h) Messung der geometrischen Empfindlichkeit mit monoenergetischen Neutronen im Energiebereich von 100 keV bis 2 MeV

Um die Zuverlässigkeit der Berechnungen der geometrischen Empfindlichkeit zu prüfen, wurden Messungen mit monoenergetischen Neutronen am 3 MeV Van de Graaf-Beschleuniger des Instituts für Angewandte Kernphysik durchgeführt. Die exp**eri**mentelle Anordnung ist in Abb.24 skizziert. Als Neutronenflußmonitor wurde eine 235 U-Spaltkammer verwendet. Spaltkammer und 3 He-Spektrometer sind symmetrisch zum Zentrum des Neutronenstrahls angeordnet. Als Neutronen produzierende Reaktionen wurden die 7 Li(p, 7 Be)n- und die T(p, 3 He)n-Reaktion verwendet. Die 7 Li(p, 7 Be)n-Reaktion hat eine Schwellenergie von 1.881 MeV und liefert monoenergetische Neutronen ab 1.920 MeV Protonenenergie (Neutronenenergie unter O^O: 120 keV). Bei 2.378 MeV Protonenenergie (652 keV Neutronenenergie unter O^O) wird auch



<u>Abb.24</u> Schematische Darstellung der experimentellen Anordnung zur Messung der geometrischen Empfindlichkeit
die Reaktion ${}^{7}\text{Li}+p$ $-\frac{7}{7}$ Be+n-2.076 MeV möglich. Der angeregte 7 Be-Kern zerfällt unter Aussendung eines γ -Quants von 430 keV. Da die Intensität dieser Konkurrenzreaktion bis auf 10% an-wächst, muß bei Verwendung von höheren Protonenenergien als 2.378 MeV für diesen Anteil korrigiert werden. Die ${}^{7}\text{Li}-Target-$ dicken betrugen 20-40 keV. Der Abstand von 7.5 cm zwischen den Detektoren und dem Target erlaubt einen maximalen öffnungs-winkel des Neutronenstrahls von 15[°] und führt daher zu einer gegenüber der durch die Targetdicke verursachten vernachlässigbaren Streuung der Neutronenergien 61 .

Neutronen mit Energien von mehr als 1.3 MeV lassen sich mit einem 3 MeV Beschleuniger nur noch mit der $T(p, {}^{3}He)n$ -Reaktion erzeugen. Sie liefert oberhalb 1.148 MeV monoenergetische Neutronen. Zur Verfügung standen 1 Ci TiT-Targets mit einer Ti-Schichtdicke von 0.42 µ, die zu einem Protonenenergieverlust von 19.0 keV bzw. 14.2 keV bei 2 MeV bzw. 3 MeV Protonenenergie führt. Während die ⁷Li-Targets mit Luft gekühlt werden konnten, mußten die TiT-Targets mit Wasser gekühlt werden; dazu floß ein 1 mm dicker Wasserfilm über den 0.3 mm dicken kupfernen Targetträger. Im Target und an den umgebenden Materialien gestreute Neutronen führten zu einem nicht vernachlässigbaren Untergrund, dessen Korrektur noch beschrieben wird. Die Spektrometer konnten um eine durch die Mittelebene des Spektrometers gehende Achse kontinuierlich gedreht werden, um verschiedene Einfallswinkel relativ zur Spektrometerachse zu realisieren. Messungen wurden bei 0° , 45° und 90° durchgeführt.

Zwei typische Impulshöhenspektren für beide Produktionsreaktionen zeigt die Abb.25. Man erkennt im Falle des ⁷Li-Targets einen zweiten Neutronenpeak, der von der erwähnten Konkurrenzreaktion ⁷Li(p, ⁷Be)n herrührt. Ein thermischer Neutronenpeak, der bei Verwendung des wassergekühlten Tritium-Targets erkennbar ist, tritt beim luftgekühlten ⁷Li-Target nicht auf. Obwohl der Untergrund, wie man aus Abb.25 sehen kann, sehr gering ist, würde seine Vernachlässigung dennoch auf Fehler bis zu 5% führen. Daher wurden die gemessenen Spektren $z_{\rm He}(E)$



Abb.25 TTi-Targets

zunächst mit der berechneten geometrischen Empfindlichkeit und dem ³He-Wirkungsquerschnitt ausgewertet:

$$\Phi(E) \sim rac{z_{He}(E)}{\epsilon_{q}(E) \cdot \sigma_{n,p}(E)}$$

Dieses Neutronenspektrum wurde sodann mit dem U-235-Spaltquerschnitt multipliziert und sowohl über den gesamten Energiebereich als auch über den Peak integriert. Das Verhältnis der beiden Integrale liefert schließlich den Korrekturfaktor K für die U-235-Spaltkammerzählrate Z₃₅

$$J_{1} = \int_{0}^{E_{0}} \sigma_{f}^{35}(E) \Phi(E) dE \qquad J_{2} = \int_{E_{u}}^{E_{0}} \sigma_{f}^{35}(E) \Phi(E) dE$$
$$K = \frac{J_{2}}{J_{1}} \qquad Z_{35}^{K} = K \cdot Z_{35}$$

Aus der korrigierten U235-Spaltzählrate Z^K₃₅ und der über den Peak integrierten Spektrometerzählrate Z_{He} berechnet man dann die geometrische Empfindlichkeit:

$$\varepsilon_{g}(E) = \frac{\sigma_{f}^{35}(E) N^{35} Z_{He}}{\sigma_{n,p}(E) N_{He}^{2} Z_{35}^{K}}$$

Der absolute Wert der gemessenen geometrischen Empfindlichkeit hängt also von den Teilchenzahlen und den mikroskopischen Wirkungsquerschnitten der beteiligten Isotope ab. Sowohl die Anzahl der U-235-Atome als auch die Anzahl der ³He-Atome waren auf ±2% genau bekannt. Der Fehler des absoluten Werts des ³He(n,p)t-Querschnitts liegt bei 5-10% (Abschnitt 2e); das gleiche gilt für den U-235-Spaltquerschnitt⁶². Für den U-235-Spaltquerschnitt wurden die von Davey empfohlenen Werte⁶³ und für den ³He(n,p)t-Querschnitt die Als-Nielsen Werte³⁹ genommen. Geringe systematische Fehler können auch durch den endlichen Öffnungswinkel des Neutronenstrahls sowie durch Inhomogenitäten im Target und durch eine Dezentralisierung des Protonenstrahls verursacht werden. Der gesamte Fehler wurde mit 7-14% abgeschätzt. In Abb.26 sind die Meßergebnisse für ein Spektrometer mit 450 mm² großen Detektoren zusammen mit berechneten Werten dargestellt. Die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment ist für die beiden dargestellten Einfallsrichtungen völlig befriedigend und bestätigt die Zuverlässigkeit der bei der Rechnung verwendeten Daten.

Ein Nebenprodukt der Messungen ist die Bestätigung des durch die Rechnungen gefundenen großen Unterschieds der Energieverlustverteilungen für senkrecht und parallel zur Spektrometerachse einfallende Neutronenstrahlbündel sowie der Beweis der zufriedenstellenden Korrektur der Energieverluste im Proportionalzähler (Abb.15).

i) Die absolute Empfindlichkeit des Spektrometers

Es ist nun auch möglich, die absolute Empfindlichkeit E des Spektrometers zu berechnen:

$$E = N_{He} \cdot \epsilon_q(E_n) \sigma_{n,p}(E_n)$$

Hierbei ist N_{He} die Gesamtzahl der ³He-Atome im Spektrometer. Abb.27 zeigt die Empfindlichkeit des 450 mm²-Spektrometers als Funktion der Neutronenenergie für eine isotrope Flußverteilung. Nimmt man als obere Grenze für die Lebensdauer der Detektoren 10^{12} schnelle Neutronen pro cm², insgesamt also $4.5 \cdot 10^{12}$, so läßt sich mit diesem Spektrometer folglich eine Gesamtzählrate von 0.9 - 1.8 10^7 erzielen, was die Messung von etwa 30 Reaktorspektren mit guter Statistik erlaubt.



senkrecht zur Spektrometerachse einfallende Neutronenstrahlbündel



5) Meßergebnisse und Vergleich mit anderen Meßmethoden

Das beschriebene ³He-Spektrometer wurde in einer Vielzahl von Messungen mit anderen Meßmethoden verglichen. Einige Ergebnisse dieser Vergleichsmessungen sind in den Abb.28-31 zusammengestellt. Zusammen mit großen zylindrischen Protonenrückstoßzählern⁶⁴ wurden die Spaltneutronenspektren von ²³⁵U, ²³⁹Pu und ²⁵²Cf bestimmt⁶⁵ (Abb.28). Diese Messungen sind für einen Vergleich besonders gut geeignet, da sich beide Meßmethoden in einem außerordentlich großen Energiebereich überlappen (100 keV-7MeV). Die Unterschiede der über ABN-Energiegruppen integrierten und oberhalb 500 keV flächennormierten ³He- und Protonenrückstoßspektren betragen weniger als ±8% oberhalb 500 keV. Unterhalb 500 keV treten bei den 235 U- und 239 Pu-Spektren größere Diskrepanzen auf, die aber zum größten Teil durch den unterschiedlich hohen Untergrund von rückgestreuten Neutronen bei beiden Meßmethoden verursacht sind. Dies wird bestätigt durch das Fehlen ähnlich großer Differenzen im Falle des ²⁵²Cf-Spaltspektrums, das in einer anderen experimentellen Anordnung, bei der rückgestreute Neutronen weitgehend vermieden werden konnten, gemessen wurde.

Die Abb.29 und 30 zeigen zwei Reaktorspektren, die mit dem 3 He-Spektrometer und kugelförmigen Protonenrückstoßzählern gemessen wurden. SNEAK 8 ist ein Urancore mit $k_{\infty} = 1$ Testzone, dessen Spektrum besonders empfindlich gegen U-238-Querschnittsdaten ist⁶⁶. Die gemessenen Spektren im Zentrum der Anordnung zeigen auch hier ausgezeichnete Übereinstimmung. STARK 6 entspricht in der Zusammensetzung seiner schnellen Zone der Anordnung SNEAK 3A-2, einem schnellen dampfgekühlten Reaktor mit Uranbrennstoff⁶⁷. Das Spektrum weist eine Reihe von Al, Fe und Sauerstoffresonanzen auf, die teilweise auch vom ³He-Spektrometer aufgelöst werden. Infolge des unterschiedlichen Auflösungsvermögens beider Meßmethoden sind die Differenzen in der Nähe dieser Resonanzen jedoch größer, dennoch stimmen auch hier die über größere (ABN) Gruppen integrierten Spektren innerhalb ±8% überein.







Abb.30 Neutronenspektrum im Zentrum von STARK 6

Ein Vergleich mit anderen Laboratorien wurde an der $\Sigma\Sigma$ -Secondary-Standard-Anordnung in Mol durchgeführt. **DE** ist eine Hohlkugel von 25 cm Außendurchmesser, bestehend aus einer 5 cm dicken Natururanschale und einer inneren B_AC- Schale mit Al-Hülle, die sich in einem gleichfalls kugelförmigen Hohlraum in der thermischen Säule des BRI-Reaktors befindet. Weitere Details der Anordnung findet man in⁶⁸. Das Spektrum wurde wiederum mit Protonenrückstoßzählern und mit 3 He- und 6 Li-Halbleiterspektrometern gemessen. Im oberen Teil der Abb.31 wurden einige der gemessenen Spektren eingezeichnet, und im unteren Teil sind diese Spektren mit einem berechneten Spektrum verglichen worden. Aus dem Verhältnissen erkennt man, daß die über breite (ABN) Gruppen integrierten Spektren bis auf $\pm 6\%$ übereinstimmen. Da es sich bei den verwendeten Meßmethoden - Protonenrückstoß-, ³He- und ⁶Li-Spektrometer – um voneinander völlig unabhängige Methoden handelt, kann man annehmen, daß diese Differenzen auch repräsentativ für den Fehler der Einzelmessung sind. Die Erfahrung hat jedoch gezeigt, daß es in jedem Fall ratsam ist, ein Spektrum stets mit mehreren Methoden gleichzeitig zu messen, um die Wahrscheinlichkeit von zeitweiligen unentdeckten systematischen Fehlern, die ihre Ursache in einer fehlerhaften Elektronik, in der Gasfüllung oder in den Halbleiterdetektoren haben können, zu verringern. Die sorgfältige Untersuchung und Wiederholung von Messungen mit außergewöhnlich großen Diskrepanzen hat bisher stets zu einer Klärung dieser Unterschiede geführt. Man kann daher sagen, daß es unter Beachtung dieser Grundsätze möglich ist, aus einem Vergleich von gemessenen und gerechneten Spektren Rückschlüsse auf Diskrepanzen in den Kerndaten und/oder Unvollkommenheiten der benutzten mathematischen Modelle zu ziehen, sofern die Abweichungen größer als ±8% sind.





TEIL II

Messung und Interpretation von Neutronenspektren in einem massiven Uranmetallblock

1) Überblick über bisherige Messungen an Uranmetall- Exponential-Experimenten

Das erste von E. Fermi vorgeschlagene Exponentialexperiment mit Natururan wurde im Jahre 1943 von Snell et al.⁶⁹ im Rahmen der Arbeiten, die die Erstellung des ersten Kernreaktors zum Ziel hatten, durchgeführt. Dieses Experiment wurde später mit verbesserten Meßmethoden in Argonne⁷⁰ und Los Alamos⁷¹ fortgesetzt. Die Messungen sollten vor allem Aufschluß geben über materielle Bucklings, mittlere Querschnitte in einem Natururangleichgewichtsspektrum, Spektralindices, Diffusionslängen und Reflektor-Savings. In Argonne und Los Alamos bestand die Möglichkeit, Uranblöcke verschiedener Anreicherungsgrade (von 0.72% - 9.18%) zu untersuchen und dadurch weitere Ergebnisse zur Physik schneller Reaktoren zu gewinnen. Ein Vergleich der Meßergebnisse von Chicago, Argonne und Los Alamos offenbarte jedoch außerordentlich große Diskrepanzen. Die gemessenen Werte für das Spaltratenverhältnis $\sigma_{f}(U-235)/\sigma_{f}(U-238)$ im Natururangleichgewichtsspektrum reichten von 200 bis 363, die Werte für die Diffusionslänge von 9.6 cm bis 13.18 cm. Eine Klärung dieser Unterschiede wurde durch die sorgfältige Wiederholung der Experimente von Chezem in Los Alamos⁷² und J.L. Campan et al. in Saclay⁷³ herbeigeführt. Chezem hat seine Messungen an reflektionsfreien vertikal errichteten Natururanblöcken von 15" und 21" Durchmesser und 30.7" Höhe durchgeführt. Die Uranmetallzylinder wurden von einem eigens für diesen Zweck gebauten schnellen Quellreaktor (Hydro) getrieben. In Saclay stand ein Natururanwürfel von 80 cm Kantenlänge, der vor der thermischen Säule des EL2-Reaktors aufgebaut worden war, zur Verfügung. Chezem erhielt für das Spaltratenverhältnis $\sigma_{f}(U-235)/\sigma_{f}(U-238)$ mit verschiedenen Meßmethoden Werte zwischen 238±6 und 243±15, während in Saclay 230±10 gemessen wurde. Diese Ergebnisse stimmen auch gut überein mit russischen Messungen, die 249 \pm 20 ergaben⁷⁴. Für die Diffusionslänge wurden 95.25±0.5 bzw. 91.7±1.8 mm in Saclay bzw. Los Alamos ermittelt. Die unterschiedlichen Relaxationslängen, die mit Detektoren

verschiedener spektraler Empfindlichkeit gemessen wurden, deuten jedoch darauf hin, daß der Gleichgewichtszustand in diesen Experimenten nicht erreicht wurde. Dies wird an Hand der Diskussion in Abschnitt 4a) noch näher erläutert werden.

In den letzten Jahren hat die Untersuchung von Systemen mit Natur- oder abgereichertem Uran erneut große Aufmerksamkeit gewonnen. Da die Spektren solcher Systeme außerordentlich empfindlich gegen Änderungen der inelastischen und Einfangquerschnitte von U-238 sind, scheinen vor allem Spektrumsmessungen zur Verbesserung dieser immer noch recht unsicheren Querschnitte geeignet zu sein. Spektrumsmessungen an einer abgereicherten Urankugel von 20" Durchmesser wurden 1967 von Neill et al.⁷⁵ zwischen 400 keV und 15 MeV mit der Flugzeitmethode durchgeführt. Kaushal et al.⁷⁶ haben die Zeitabhängigkeit des Neutronenflusses für verschiedene Neutronenengien in einem Quader aus abgereichertem Uran mit einem klassischen ³He-Spektrometer gemessen, und Bennett⁷⁷ hat in der gleichen Zeit, in der auch das vorliegende Experiment durchgeführt wurde, Protonenrückstoßmessungen in einem abgereicherten Uranmetallblock von 75x80x90 cm vor der thermischen Säule des Argonne Thermal Source Reactors gemacht. Eine detaillierte Interpretation dieser Experimente mit dem Ziel, Aussagen über die Wirkungsquerschnitte von U-238 zu gewinnen, steht jedoch noch aus. Das hier beschriebene Experiment hat vor allem den Vorteil, daß verschiedene Spektrumsmeßmethoden gleichzeitig angewandt werden konnten und daß dadurch der gesamte interessante Energiebereich von 10 keV bis 5 MeV gemessen werden konnte. Außerdem ermöglichte die hohe Quellstärke auch Spektrumsmessungen bis weit in das Innere des Uranblocks, dessen axiale Ausdehnung von 120 cm größer war als die aller bisher untersuchten Uranmetallexponentialpiles.

2) Ausbreitung der Neutronen im Uranblock und daraus resultierende Überlegungen für den Aufbau des Experiments

Um Spektrums- und Ratenmessungen über einen möglichst großen Bereich im Uranblock durchführen zu können, benötigt man eine Neutronenquelle hoher Intensität. Eine solche steht in Karlsruhe mit der thermischen Säule des FR2-Reaktors zur Verfügung, wo ein Fluß von etwa 10¹⁰ thermischen Neutronen pro cm² und sec erreichbar ist. Damit sind Spektrumsmessungen bis zu 90 cm ins Innere des Blocks möglich.

Die thermischen Neutronen rufen im vorhandenen 235 U des Blocks Spaltungen hervor und bauen so in seinen ersten Zentimetern einen schnellen Fluß auf. Der thermische Fluß wird geschwächt und sehr schnell vernachlässigbar. Der schnelle Fluß, der zunächst die Zusammensetzung eines Spaltspektrums hat, breitet sich aus und wird durch inelastische Stöße an ²³⁸U-Kernen zu niedrigen Energien heruntergestreut. Daneben können die Neutronen - soweit ihre Energie oberhalb der Spaltschwelle von 2^{238} U liegt - Spaltungen im 2^{38} U und natürlich auch im vorhandenen ²³⁵U verursachen. Bei Fortschreiten entlang der Uranblockachse verändert sich die energetische Verteilung der Neutronen, und in genügender Entfernung von der Quelle und den Blockgrenzen hat sich das Spektrum stabilisiert, es wird ortsunabhängig (Abb.32). Dieses Spektrum bezeichnet man als Gleichgewichtsspektrum, es ist charakteristisch für die betreffende Uranmischung und völlig unabhängig vom Quellspektrum.

Die Untersuchung sowohl der transienten Spektren als auch des Gleichgewichtsspektrums ist zur Gewinnung von Informationen über die bestimmenden ²³⁸U-Kerndaten geeignet. Die Diskussion in Abschnitt 4a) wird jedoch zeigen, daß in einem Uranblock der genannten Abmessungen allenfalls ein Pseudogleichgewichtsspektrum erreicht werden kann. Im Mittelpunkt der theoretischen und experimentellen Untersuchungen dieser Arbeit muß daher dieses Spektrum sowie seine Einstellung stehen. Mit der Berechenbarkeit dieser transienten Spektren befaßt sich der Abschnitt 4,



<u>Abb.32</u> Berechnete ortsabhängige Neutronenspektren auf der Achse des Uranblocks

wobei die Auswirkungen der Abschirmung und der Neutronenquellverteilung mit berücksichtigt werden.

Die Platzverhältnisse vor der thermischen Säule ermöglichten keine wesentlich größeren Abstände als 50 cm zwischen der Oberfläche des Uranblocks und dem Beginn der Abschirmung. Campan et al.⁷³ hatten jedoch bereits für den von ihnen untersuchten Uranwürfel von 80 cm Kantenlänge verifiziert, daß eine Veränderung der Bedingungen an den Uranblockgrenzen nicht zu einer Veränderung der Meßergebnisse auf der Blockachse führt. Eine einfache Abschätzung zeigt aber, daß es etwas günstiger ist, den Block unmittelbar mit einer Borparaffinabschirmung zu umgeben, als Zwischenräume der genannten Größenordnung zuzulassen. Diese Ergebnisse konnten durch Kombination einer geometrischen Betrachtung mit einer eindimensionalen Transportrechnung gewonnen werden, welche sowohl die spektrale Zusammensetzung als auch die absolute Größe des rückgestreuten Flusses als Funktion des Abstands von der Quelle ergab. Daneben wurde zur Kontrolle eine Monte-Carlo-Rechnung durchgeführt, die die Ergebnisse bestätigte. Zur Berechnung des direkt von der Abschirmung umgebenen Uranblocks wurde das zweidimensionale Multigruppendiffusionsprogramm Dixy ⁷⁸ verwendet. Einige Ergebnisse dieser Berechnungen sind in Abb.33 zusammengestellt. Der Betrag des reflektierten Flusses erreicht in einer Entfernung von etwa 50 cm von der Quellfläche die Höhe des auf der Oberfläche des unreflektierten Blocks vorhandenen Flusses, und bei 80 cm beträgt er bereits das 14fache. Dies hat seinen Grund darin, daß die exponentielle Abschwächung des Flusses im Uranblock wesentlich stärker ist als die durch Geometriefaktoren verursachte. Eine den Uranblock direkt umgebende Paraffinabschirmung führt dagegen an allen Orten auf der Uranblockoberfläche zu einer etwa gleich großen Erhöhung des Flusses, und ihre Auswirkung auf die Spektren auf der Uranblockachse sind daher auf der gesamten Länge der Achse gering. Der Unterschied zwischen den im rechten Teil der Abb.33 dargestellten radialen Spaltratentraversen des reflektierten und des unreflektierten Blocks ist repräsentativ für alle Orte auf der Blockachse.



Abb.33 Einfluß der Abschirmung auf Flüsse und Raten im Uranblock

 Aufbau des Exponentialexperiments vor der thermischen Säule des FR2

Der Uranblock wurde aus vernickelten Metallblöcken (Hauptmaß 2x2x4 Inch) so zusammengesetzt, daß keine durchgehenden Spalten in axialer Richtung entstehen und daß durch überlappende Steine zwischen den einzelnen Setzschichten ein genügend fester Verbund gewährleistet wird (Abb.34). Um ein besseres Spalt- zu Einfangratenverhältnis zu erzielen und um die thermischen Neutronen schneller zu absorbieren, bestehen die ersten 6 Inch aus Natururan. Sie befinden sich mit einem Querschnitt von 46x61 cm in der Abschlußtür der thermischen Säule anstelle des sonst den SO-Kanal abschließenden Bleistopfens (Abb.36). An die Natururanschicht schließt sich der Hauptblock aus abgereichertem Uran (0.4%) mit einem Querschnitt von 81x81 cm und einer Länge von 105 cm an (Abb.35). Das Gesamtgewicht beträgt 14 t.

Zur Aufnahme von Meßinstrumenten enthält er einen zentralen axialen und einen Querkanal in 40 cm Entfernung von der Quelle. Die Kanäle haben einen quadratischen Querschnitt von 4,7x4,7 cm und sind mit 1 mm dicken Aluminiumblechen ausgekleidet. Sie können mit quaderförmigen Füllblöcken von 0.5 und 1 Inch Dicke oder mit Halbblöcken gleicher Dicke, die zusammengesetzt eine zylindrische Bohrung von 18 mm enthalten, auf einem 1 mm dicken teflonbeschichteten Aluminiumladestreifen beschickt werden. Für die Aufnahme von Neutronenspektrometern und Spaltkammern existieren außerdem noch Spezialblöcke, die der Form und den Abmessungen der Meßinstrumente angepaßt sind.

Der Gesamtblock ist auf der 20 mm starken Stahlplatte eines auf Schienen verfahrbaren Wagens aufgebaut (Abb.35). Eine portalartige Abschirmung aus 10-20 cm Eisen sowie 60-100 cm Borparaffin kann auf einem zweiten Schienenpaar über den Uranblock gefahren werden (Abb.35). Ihre rückwärtige Wand enthält einen Durchbruch von 50x50 cm ; durch ihn ist der Zentralkanal des Blocks zugänglich. Außerdem dient er zur Aufnahme von Vorver-



<u>Abb.34</u> Ansicht des bis zur Höhe der Meßkanäle aufgebauten Uranblocks



Abb.35 Der vollständig aufgebaute Uranblock





stärkern und nicht benutzten Kanalfüllblöcken. Bei Betrieb wird er durch einen rucksackartig befestigten Schieber aus Eisen und Borparaffin verschlossen. Um den Querkanal erreichen zu können, muß das Abschirmportal um etwa 60 cm verschoben werden; bei geschlossenem Bleiboralschieber der thermischen Säule kann er dann unter zulässiger Strahlenbelastung beund entladen werden.

Der Neutronenquellfluß kann durch einen an der Innenwand der Abschlußtür der thermischen Säule angebrachten motorgetriebenen Boralvorhang abgeschaltet werden. Durch Ausräumen des Graphits im SO-Kanal der thermischen Säule (Abb.36) bis auf eine Restschicht von 85 cm zwischen Core-Rand und Uranblock kann an der Stirnfläche des Blocks ein thermischer Fluß von maximal 10^{10} /cm²sec erreicht werden. Mit Hilfe von cadmierten Stahlblechen kann er auf $\frac{1}{10} - \frac{1}{1000}$ gesenkt werden. Dadurch sind auch Spektrumsmessungen im vorderen Blockteil möglich. Um zu verhindern, daß durch die Bleitür thermische Neutronen nach außen treten und so nicht nur durch die Stirnfläche in den Uranblock gelangen, ist der Durchtritt des SO-Kanals durch die Bleitür mit Cd- und Boralblechen ausgekleidet.

Zur fest installierten Instrumentierung des Uranblocks gehören eine U-235- und U-238-Spaltkammer, die als Bezugsmonitore für alle Messungen dienen. Außerdem befinden sich an der Stirnfläche des Blocks zwei Thermoelemente zur Überwachung der Temperatur bei hohen Flüssen.

Methoden zur Berechnung der Spektren auf der Uranblockachse

a) Einleitung

Eine exakte analytische Lösung der dreidimensionalen Boltzmannschen Transportgleichung für den Uranblock ist nicht durchführbar. Selbst die Lösung für den unendlich ausgedehnten Halbraum läßt sich nicht ohne stark vereinfachende Annahmen (konstante Wirkungsquerschnitte, Maxwellverteilung der inelastisch

gestreuten Neutronen) in geschlossener Form angeben⁷⁹. Dennoch ist eine solche Lösung von großem Interesse, da sie mehr Einblick in die physikalischen Vorgänge gewährt als unhandliche numerische Berechnungen. Neutronenphysikalisch ist der Uranblock ein Medium, bei dem Veränderung und Regeneration des Spektrums miteinander konkurrieren. Dadurch wird das Auftreten eines sich selbst erhaltenden Spektrums ermöglicht. Mathematisch bedeutet das, daß die Transportgleichung für das unendlich ausgedehnte quellfreie Medium eine Lösung der Form $\psi(x,\mu,E)=A(E,\mu)e^{-x/L}$ besitzt. Die Diffusionslänge L muß dabei der Bedingung

$$\frac{1}{L} < \Sigma_{tmin}$$

genügen, wobei E_{tmin} der kleinste vorkommende makroskopische totale Wirkungsquerschnitt ist. Die gesamte Lösung der Transportgleichung für den Uranblock läßt sich somit als Summe eines in großer Entfernung von der Quelle und den Blockgrenzen dominanten, in Ort und Energie separierbaren Terms und eines nicht separierbaren transienten Terms darstellen.

$$\psi(\mathbf{x},\boldsymbol{\mu},\mathbf{E}) = \mathbf{A}(\mathbf{E},\boldsymbol{\mu})\mathbf{e}^{-\frac{\mathbf{X}}{\mathbf{L}}} + \Phi_{\mathrm{tr}}(\mathbf{x},\boldsymbol{\mu},\mathbf{E})$$

Das ortsabhängige Spektrum des Uranblocks hängt von der relativen Bedeutung dieser beiden Terme ab. Nicolaenko⁷⁸ hat gezeigt, daß Anteile von Φ_{tr} unter bestimmten Voraussetzungen langsamer abklingen als $e^{-\Sigma tmin^X}$. Solche Terme bezeichnet man als spektrale Transienten im Gegensatz zu den bekannten räumlichen Transporttransienten.

Das absolute Minimum des totalen Wirkungsquerschnitts von 238 U beträgt 1.2 barn und liegt unterhalb einer Resonanz bei 186 eV. Die Form des schmalen Minimums wird durch die Interferenz von Resonanz-und Potentialstreuung verursacht. Mit diesem Wert für Σ_{tmin} berechnet man für die untere Grenze der Diffusionslänge im Uranblock 17.7 cm. Die von Campan et al.⁷³ und Chezem⁷²

gemessenen Relaxationslängen von 9-9.5 cm für Natururan können daher nicht mit der Diffusionslänge identisch sein. Der Eindruck, daß das Gleichgewichtsspektrum in diesen Experimenten nahezu erreicht wurde, wird durch die Lage des absoluten Minimums von Σ_{+} in einem Energiegebiet mit zunächst geringer Neutronenintensität und kleinen makroskopischen Spaltquerschnitten erklärt. Obwohl die relative Intensität des Neutronenflusses im Bereich des Minimums von Σ_+ mit zunehmender Entfernung von der Quelle ständig anwächst, ist die Rückwirkung durch Spaltung auf das Spektrum im übrigen Energiebereich zunächst gering. Eine theoretische Untersuchung der Annäherung an das Gleichgewichtsspektrum zeigt, daß eine merkliche Beeinflussung des transienten Spektrums durch das schmale Minimum von Σ_+ erst in Entfernungen von mehr als 100 cm von der Quelle eintritt. Die relative Intensität des Neutronenflusses an der Stelle $E(\Sigma_{tmin})$ ist dann so stark angewachsen, daß sie wesentlich zur Spaltquelle in der Transportgleichung beiträgt.

Da alle anderen Minima im totalen Wirkungsquerschnitt von 238 U 3 barn nicht unterschreiten, stellt sich nach Abklingen der spektralen Transienten in etwa 40 cm von der Quelle im gesamten Bereich oberhalb der Energie des absoluten Minimums ein Pseudogleichgewichtszustand ein, der sich bis 100 cm nahezu unverändert erhält. In noch größerer Entfernung von der Quelle tritt dann die erwähnte Rückkopplung auf das gesamte Spektrum durch die hohe Neutronenintensität und die damit verbundene hohe Spaltrate bei E(Σ_{tmin}) ein.

Multigruppenrechnungen sind nur dann in der Lage, das soeben beschriebene Verhalten des Neutronenflusses richtig wiederzugeben, wenn die Gruppeneinteilung fein genug ist, um die Form des resonanzartigen Minimums im totalen Wirkungsquerschnitt im Detail zu reproduzieren. Wenn die Interpretation der Neutronenspektren jedoch auf den Energiebereich oberhalb 1 keV und auf Orte bis zu 100 cm von der Quelle beschränkt wird, so wird auch durch eine grobe Energieeinteilung im Bereich des Minimums

nur ein vernachlässigbarer Fehler eingeführt. Bei der von Σ₊ Diskussion der Anwendbarkeit von Multigruppenrechnungen auf die Berechnung des Uranblocks muß jedoch außerdem bedacht werden, daß sich die Spektren in den ersten 20 cm des Blocks sehr stark ändern und daß man daher nur bei genügend feiner Gruppeneinteilung ortsunabhängige, mit einem einzigen Wichtungsspektrum erzeugte Gruppenkonstanten verwenden darf. Dieser Punkt wird in Abschnitt 4c) näher diskutiert. Dabei wird sich herausstellen, daß eine Einteilung des gesamten Energiebereichs in 26 Energiegruppen zu grob ist. Bei noch größeren Gruppenzahlen sind jedoch bei der Kapazität der verfügbaren Rechenmaschinen nur eindimensionale Rechnungen möglich. In Abschnitt 4b) wird daher zunächst diskutiert, ob eindimensionale, in Plattengeometrie durchgeführte Rechnungen die Spektren auf der Uranblockachse richtig beschreiben.

b) Reduktion des dreidimensionalen auf ein eindimensionales
 Problem; Vergleich von ein- und zweidimensionalen Sn Rechnungen

Die dreidimensionale Boltzmannsche Transportgleichung für einen Uranblock mit Flächenquelle in der Ebene z=O lautet:

In Gleichung (17) bezeichnen Σ_t , Σ_e , Σ_{in} und Σ_f den totalen, den elastischen, den inelastischen und den Spaltquerschnitt, während $\omega_e(E' \rightarrow E, \vec{\alpha}' \rightarrow \vec{\alpha})$ und $\omega_{in}(E' \rightarrow E, \vec{\alpha}' \rightarrow \vec{\alpha})$ die Wahrscheinlichkeiten der Streuung von E' nach E und $\vec{\alpha}'$ nach $\vec{\alpha}$ für elastische bzw. inelastische Streuprozesse beschreiben. $\chi(E)$ ist das Spaltspektrum und $\nu(E)$ die mittlere Anzahl der pro Spaltung freiwerdenden Neutronen. Um das Problem auf ein eindimensionales zu reduzieren, das nur von z,E und μ abhängt, macht man die folgenden Ansätze:

1.
$$\psi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) = \Psi(z, E, \mu) \cdot \cos(B_x(E, z) \cdot x) \cdot \cos(B_y(E, z) \cdot y)$$

2.
$$\int \mathbf{x} = -\mathbf{D}(\mathbf{E}) \frac{\partial \phi}{\partial \mathbf{x}} (\vec{\mathbf{r}}, \mathbf{E}, \vec{\alpha}); \quad \frac{\partial \int \mathbf{x}}{\partial \mathbf{x}} = +\mathbf{D}\mathbf{B}_{\mathbf{x}}^{2} \phi$$

$$\int_{\mathbf{Y}} = -\mathbf{D}(\mathbf{E}) \frac{\partial \phi}{\partial \mathbf{y}} (\vec{\mathbf{r}}, \mathbf{E}, \vec{\alpha}); \quad \frac{\partial \int_{\mathbf{Y}}}{\partial \mathbf{y}} = +\mathbf{D}\mathbf{B}_{\mathbf{y}}^{2} \phi$$

Die Approximation der transversalen Flußverteilung durch Cosinus-Funktionen ist zumindest in einer gewissen Umgebung der Uranblockachse immer möglich. Die Abhängigkeit der Bucklings B_x und B_y von z muß jedoch so schwach sein, daß $\frac{\partial \varphi}{\partial z} \gg \frac{\partial B}{\partial z}$. Die Diffusionsapproximation 2 für den Strom in xbzw. y-Richtung beschreibt sicher nicht die Leckage des winkelabhängigen Flusses richtig, sie liefert jedoch eine brauchbare Korrektur für den integralen Fluß $\Phi(\vec{r}, E) = \left(\psi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) d\Omega, \psiie sich im folgenden ergeben wird.$

Mit den Ansätzen 1. und 2. erhält man schließlich:

$$\mu \frac{\partial \varphi(z, E, \mu)}{\partial z} + \left\{ \Sigma_{t}(E) + D(E) / B_{x}^{2}(E, z) + B_{y}^{2}(E, z) / \right\} \varphi(z, E, \mu) =$$

$$= \text{Streu- + Spalt- + externe Quelle}$$

Um die Brauchbarkeit dieser Näherungen zu zeigen, wurden zweidimensionale S₄-Rechnungen des zylindrisierten Uranblocks unter Berücksichtigung der Abschirmung durchgeführt und diese mit eindimensionalen S₄-Rechnungen verglichen. Für diese Rechnungen wurden die Transportprogramme DTK⁸⁰ und SNOW⁸¹ verwendet. In die zweidimensionalen Rechnungen wurde die gemessene thermische Quellverteilung eingeführt.

Die radialen Verteilungen der Gruppenflüsse wurden für einen inneren Zylinder von 30 cm Durchmesser durch $\Phi(r) = \int_0 (2.405 \frac{r}{R})$ im quadratischen Mittel approximiert. Abb.37 zeigt das der



Abb.37 Abhängigkeit der aus zweidimensionalen S -Rechnungen bestimmten reziproken extrapolierten Radien vom Ort auf der Blockachse für repräsentative Energiegruppen

Rechnung zugrunde gelegte Modell sowie die Abhängigkeit der so ermittelten reziproken extrapolierten Radien vom Ort z auf der Uranblockachse für 3 repräsentative Neutronenenergiegruppen. Man erkennt, daß die Abhängigkeit von R⁻¹ von z so schwach ist, daß die Voraussetzung für die Reduktion der dreidimensionalen Gleichung - $\frac{\partial \varphi}{\partial z} \gg \frac{\partial B}{\partial z}$ - als erfüllt angesehen werden kann. Man erhält für einen exponentiellen Flußverlauf $\varphi(z) \sim e^{-z/L}$ mit L = 8 cm ein Verhältnis von $\frac{\partial B}{\partial z}/\frac{\partial \varphi}{\partial z} < 1.4 \, 10^{-3}$. Abb.38 zeigt schließlich R⁻¹ als Funktion der Energie für verschiedene Orte z. Auch hier ist die Abhängigkeit im Energiebereich 10 keV bis 10 MeV sehr schwach. Erst unterhalb 10 keV nähert sich R⁻¹ allmählich dem Wert Null. Da jedoch bei Energien unterhalb 10 keV kaum noch Neutronen vorhanden sind, ist das Verhalten von R⁻¹ in diesem Bereich nur von geringer Bedeutung.

Für die praktische Durchführung der eindimensionalen S₄-Rechnung wird der Uranblock in z-Richtung in verschiedene Zonen mit ortsunabhängigen Bucklings eingeteilt. Das dafür verwendete gruppenabhängige Buckling gewinnt man durch Mittelung der in Abb.37 dargestellten Ortsabhängigkeit von R⁻¹ über die einzelnen Zonen. Ein Vergleich von eindimensionalen, mit energie- und zonenabhängigen Bucklingskorrigierten, und zweidimensionalen S,-Rechnungen ist in Abb.39 unten dargestellt. Man erkennt, daß die berechneten Spektren zwischen 20 und 70 cm in dem für die Messungen besonders interessanten Energiebereich von 10 keV bis 6.5 MeV um weniger als ±2% voneinander abweichen. Da die Spektren bei z=20.5 cm normiert wurden, zeigt Abb.39 auch, daß die Intensität des Neutronenflusses der eindimensionalen Rechnung geringfügig schwächer abklingt als die Intensität des zweidimensionalen Flusses. Dieser Unterschied, der etwa 1% in den Relaxationslängen ausmacht, liegt jedoch bereits außerhalb der Meßgenauigkeit. Daß eine exakte Bucklingkorrektur der eindimensionalen Spektren notwendig ist, zeigt Abb.39 oben, wo das Verhältnis der Spektren einer eindimensionalen unkorrigierten und einer zweidimensionalen Rechnung aufgetragen wurden.



Sn-Rechnungen

Aus Darstellungsgründen wurden die Verhältnisse diesmal bei z = 40.3 cm normiert. Erst bei 70.8 cm weichen die berechneten Spektren um weniger als ± 2 % voneinander ab, während der Unterschied bei z = 20.5 cm noch ± 20 % beträgt. Auch klingt die Intensität der eindimensionalen Flüsse erheblich schwächer ab, was zu einem Unterschied in den Relaxationslängen von etwa 11% führt.

Bei der Untersuchung der zur Abschwächung des thermischen Flusses verwendeten cadmierten Bleche stellte sich heraus, daß die Cd-Schichtdicke nicht über die gesamte Fläche konstant war und daß die Verwendung verschiedener Bleche daher zu einer geringfügig unterschiedlichen Quellverteilung führte. Um zu untersuchen, welche Auswirkungen dies auf die Spektren auf der Uranblockachse haben kann, wurde eine zweidimensionale Rechnung mit konstanter Quellverteilung an der Stirnfläche des Uranblocks durchgeführt. Diese drastische Änderung der Quellverteilung ergab im Vergleich zur Rechnung mit der gemessenen Quellverteilung von Abb.37 einen Unterschied von ±10% bei z=20.5 cm und ±3% bei 40.3 cm in den Spektren. Da jedoch die tatsächlich festgestellten Unterschiede in den Quellverteilungen wesentlich geringer waren, können ihre Auswirkungen auf die Spektren vernachlässigt werden.

Zusammenfassendkann man sagen, daß eindimensionale, mit den richtigen Bucklings korrigierte Sn-Rechnungen für die Beschreibung der axialen Uranblockspektren mindestens zwischen etwa 20 cm und 80 cm geeignet sind. In großen Entfernungen von der Quelle(≥60 cm)geben sogar unkorrigierte eindimensionale Rechnungen die Spektren richtig wieder.

c) Abhängigkeit der Gruppenkonstanten vom Wichtungsspektrum an verschiedenen Orten auf der Uranbockachse; Vergleich von 26-Gruppen- und 208-Gruppen-Sn-Rechnungen

Die Multigruppendarstellung der Gleichung 17 erhält man durch Unterteilung des physikalisch allein wichtigen Energiebereichs von thermischen Energien bis zu 10 MeV in N Energiegruppen und Integration der Gleichung über die einzelnen Energieintervalle. Auf diese Weise ergibt sich das folgende Gleichungssystem der N-gekoppelten Differentialgleichungen:

$$\vec{\alpha} \cdot \nabla \psi^{(i)}(\vec{r}, \alpha) + \Sigma_{t}^{(i)}(\vec{r}, \vec{\alpha}) \psi^{(i)}(\vec{r}, \vec{\alpha}) = \sum_{j=1}^{i} \int_{4\pi} \Sigma_{j}^{j \to i} (\vec{r}, \vec{\alpha} \to \vec{\alpha}) \psi^{(i)}(\vec{r}, \vec{\alpha}) d\alpha' + \chi_{i} \sum_{j=1}^{N} (\nabla \Sigma_{f})^{j} \psi^{(j)}(\vec{r}, \vec{\alpha}) d\alpha + S^{(i)}(\vec{r}, \vec{\alpha}) d\alpha + S^{(i)}(\vec$$

(18)

Mit den folgenden Definitionen der Gruppenquerschnitte und Gruppenflüsse ist das Gleichungssystem 18 der Gleichung 17 völlig äquivalent:

$$\Sigma_{t}^{(i)}(\vec{r},\vec{\alpha}) = \frac{\begin{cases} \downarrow \Sigma_{t}(\vec{r},E)\psi(\vec{r},E,\vec{\alpha})dE \\ \downarrow \psi(\vec{r},E,\vec{\alpha})dE \end{cases}}{\int \psi(\vec{r},E,\vec{\alpha})dE}$$

$$\Sigma_{j \neq i}^{j \neq i}(\vec{r},\vec{\alpha} \neq \vec{\alpha}) = \frac{(i)dE(j)dE'\Sigma(E' \neq E,\vec{\alpha}' \neq \vec{\alpha})\psi(\vec{r},E',\vec{\alpha}')}{\int \psi(\vec{r},E,\vec{\alpha})dE}$$

$$\psi^{(i)}(\vec{r},\vec{\alpha}) = \int_{(i)} \psi(\vec{r},E,\vec{\alpha})dE$$
(19)

Die Gruppenquerschnitte lassen sich jedoch nicht ohne weitere Annahmen über das zunächst unbekannte Wichtungsspektrum $\psi(\mathbf{r}, \mathbf{E}, \vec{\Omega})$ berechnen. Eine Orts- und Winkelabhängigkeit des Wichtungsspektrums bewirkt, daß auch an und für sich orts-

und winkelunabhängige Querschnitte nun von beiden Variablen abhängen können. Im allgemeinen nimmt man für die Berechnung von Reaktoren orts- und winkelunabhängige Standardwichtungsspektren. Für die Berechnung der Spektren im vorderen Teil des Uranblocks ist dies jedoch nicht zulässig und kann bei Verwendung einer zu groben Energiegruppenstruktur zu erheblichen Fehlern führen. Erst, wenn die Gruppenstruktur so fein wird, daß entweder der differentielle Neutronenfluß oder die Wirkungsquerschnitte im betrachteten Energieintervall als praktisch konstant angesehen werden können, wird die Wahl des Wichtungsspektrums das Ergebnis nicht mehr beeinflussen. Im statistischen Resonanzgebiet der schweren Kerne lassen sich jedoch beide Bedingungen auch bei Wahl einer sehr großen Gruppenzahl (einige 1000) nicht erfüllen. In diesem Fall benutzt man die Tatsache, daß das Neutronenspektrum eine zum totalen Querschnitt inverse Feinstruktur besitzt, und nimmt an, daß die Stoßdichte $F(\vec{r}, E) = \Sigma_{+}(E)\psi(\vec{r}, E)$ nur schwach mit der Energie veränderlich ist. Besondere Aufmerksamkeit verdient die Berechnung der elastischen Streumatrix. Selbst im Vielgruppenkonzept der Gruppenkonstantenbibliothek Gruba⁸⁴, bei dem der Energiebereich von 1 keV bis 10 MeV in 196 Feingruppen unterteilt wird, ist für schwere Kerne elastische Streuung in die nächst benachbarte Gruppe nur aus einem kleinen Bereich der vorangehenden Feingruppe möglich. Während die Integration im Zähler der Gleichung 19 sich also nur über einen kleinen Bereich der Gruppe h erstreckt, muß die Integration im Nenner über die gesamte Gruppenbreite durchgeführt werden. Bei starker Variation der Wichtungsspektren innerhalb der Gruppe erhält man daher sehr unterschiedliche Gruppenkonstanten. Für die Streuung am Isotop K aus der Gruppe h in die Gruppe h+l gilt:



$$\alpha^{K} = \left(\frac{A^{K}-1}{A^{K}+1}\right)^{2}$$

$$A^{K} = Atomgewicht des Isotops K$$

$$N^{K} = Teilchenzahl des Isotops K$$

$$p_{e}^{K}(E'-E) = \frac{\sigma_{e}^{K}(E'-E)}{\sqrt{alle E}}$$

Da die Mischung des Uranblocks nur von zwei Isotopen gebildet wird, von denen das eine – U-238 – außerdem eine wesentlich größere Teilchenzahl besitzt als das andere (U-235), kann der Ausdruck N^{U-235}/N^{U-238}. σ_t^{U-235} (E) gegenüber σ_t^{U-238} (E) vernachlässigt werden. Außerdem gilt im Bereich der Resonanzselbstabschirmung zwischen 4 keV und 100 keV in sehr guter Näherung

$$\frac{\sigma_{e}^{U-238}(E)}{\sigma_{t}^{U-238}(E)} \approx \text{const.}$$

Damit vereinfacht sich die Gleichung 20 in

$$\sigma_{e,h+h+1}^{U-238} = \text{const.} \qquad \frac{\sum_{h+1}^{L} F(\vec{r},E') dE'}{\sum_{h+1}^{L} QE'} dE p_e(E'+E) \qquad \sum_{h+1}^{L} F(\vec{r},E') dE'} dE' \qquad \sum_{h+1}^{L} F(\vec{r},E') dE' \qquad \sum_{h+1}^{L} F(\vec{r},E') dE' \qquad \sum_{h+1}^{L} F(\vec{r},E') dE' \qquad E_{h+1} \qquad E_{h+1}$$

Da die elastische Streuung in diesem Energiebereich ferner nahezu isotrop ist, erhält man schließlich:

$$\sigma_{e,h+h+1}^{U-238} = \langle \sigma_{e}(U-238) \rangle_{h} \frac{\sum_{h+1}^{E_{h+1}/\alpha} F(\vec{r},E') dE' \frac{E_{h+1} - \alpha E'}{(1-\alpha)E'}}{\sum_{h+1}^{E_{h+1}} (21)}$$

$$f_{e,h}^{U-238}$$
 ($\sigma_0=0$) · $\langle \sigma_{e,h}^{U-238} (\sigma_0=\infty) \rangle$

Dabei sind $f_{e,h}^{U-238}(\sigma_0=0)$ der Selbstabschirmungsfaktor bei fehlendem Untergrundquerschnitt $\sigma_0=0$ und $\langle \mathbf{e}_{h}^{U-238}(\sigma_0=\infty) \rangle$ der über die Gruppe h gemittelte elastische Streuquerschnitt des in unendlicher Verdünnung vorhandenen Isotops U-238.

Oberhalb 100 keV spielt die Resonanzselbstabschirmung in U-238 keine Rolle mehr. In diesem Fall beeinflußt nur noch der globale Verlauf des Wichtungsspektrums die Werte der elastischen Streumatrix und man erhält:

$$\sigma_{e,h \rightarrow h+1}^{U-238} = \frac{\sum_{h+1}^{E_{h+1}/\alpha} \sum_{dE'\sigma_{e}^{U-238}(E')\psi(\vec{r},E')} \int_{dE}^{E_{h+1}} dE p_{e}(E' \rightarrow E)}{\sum_{h+1}^{E_{h+1}} dE' \psi(\vec{r},E')}$$
(22)

In Gleichung 22 kann man $\sigma_e^{(E')}$ durch den Mittelwert $\langle q_e^{(U-238)} \rangle_h$ im Energieintervall h ersetzen. Der dadurch verursachte Fehler ist für Energien oberhalb 100 keV kleiner als 2%.

$$\sigma_{e,h\rightarrow h+1}^{U-238} = \langle \sigma_{e} (U-238 \rangle _{h} \cdot \frac{E_{h+1}/\alpha}{\int_{e_{h+1}}^{E_{h+1}/\alpha} dE' \psi(\vec{r},E')} \int_{e_{h+1}}^{E_{h+1}/\alpha} dE p_{e} (E'\rightarrow E)$$

$$(23)$$

$$E_{h+1}^{L} dE' \psi(\vec{r},E')$$

$$E_{h+1}^{L} dE' \psi(\vec{r},E')$$

Für das Vielgruppenkonzept von Gruba (196 Gruppen im Energiebereich von 1 keV bis 10 MeV) wurde nun untersucht, ob die ortsabhängigen Stoßdichten bzw. Wichtungsspektren des Uranblocks die Werte der elastischen Streumatrix beeinflussen. Ausgehend
von den mit $E \cdot \phi(E) = \text{const.}$ gewichteten Gruppenkonstanten wurden im ersten Schritt die ortsabhängigen Spektren berechnet. Die linear interpolierten Multigruppenspektren wurden sodann zur Erzeugung neuer Gruppenkonstanten verwendet. Dabei ergaben sich erhebliche Unterschiede zwischen den alten und den neuen Gruppenkonstanten. Die neuen elastischen Überstreuwahrscheinlichkeiten lagen zwischen 2 und 6.5 MeV im Mittel 10-15% über und zwischen 300 keV und 1.5 MeV um den gleichen Betrag unter den alten Werten. Unterhalb 300 keV blieb das Verhältnis der neuen und alten elastischen Transferquerschnitte jedoch innerhalb von ±5% konstant. Demgegenüber ergab ein Vergleich von Gruppenkonstanten, die mit extrem unterschiedlichen Uranblockspektren in 7 bzw. 71 cm Entfernung von der Quelle gewonnen worden waren, nur geringfügige Unterschiede von weniger als 2%. Im zweiten Schritt wurden die Uranblockspektren mit den neuen Gruppenkonstanten erneut berechnet. Die neuen Spektren wichen jedoch von den im ersten Schritt erhaltenen Spektren um weniger als ±2% ab.

Zur Erzeugung der richtigen Gruppenkonstanten für Multigruppenrechnungen mit geringer Gruppenzahl ist es in der Reaktorberechnung üblich, das Vielgruppenspektrum einer nulldimensionalen Rechnung als Kondensationsspektrum zu verwenden. Dieses Verfahren ist jedoch für die Berechnung der Uranblockspektren in wenigen Gruppen nicht geeignet. Ein Vergleich von Gruppenkonstanten der ABN-Intervallstruktur⁸³, die durch Kondensation mit verschiedenen Wichtungsspektren gewonnen wurden, zeigt große Differenzen in den Removalquerschnitten und insbesondere in der Streumatrix. Als Kondensatinsspektren wurden die 208-Gruppenspektren einer nulldimensionalen sowie einer eindimensionalen Rechnung in 7 bzw. 71 cm von der Quelle verwendet. Maximal war der Unterschied der Removalquerschnitte in den Gruppen 6-8 (100-800 keV), wo er bis zu 20% erreichte.Um gleiche Beträge unterschieden sich in diesen Gruppen die elastischen und die inelastischen Streumatrizen der verschiedenen Wichtungsspektren. In den Gruppen, wo die Querschnitte der Schwellreaktionen steil anwachsen, ergaben sich ebenfalls Differenzen um 15%, so für den Spaltquerschnitt von U-238 in Gruppe 5 (0.8-1.4 MeV) und für den totalen inelastischen Querschnitt in Gruppe 9

(46.5-100 keV). Es muß betont werden, daß die größten Unterschiede der Gruppenkonstanten bei Verwendung der beiden Uranblockwichtungsspektren auftraten, während das Wichtungsspektrum der nulldimensionalen Rechnung Gruppenkonstanten lieferte, deren Werte dazwischen lagen, wenngleich näher an den Gruppenkonstanten des ersten Uranblockwichtungsspektrums (7 cm von der Quelle). Aufgrund der hier gefundenen großen Unterschiede der Gruppenkonstanten eines 26-Gruppensatzes kann man vermuten, daß die Energieunterteilung dieses Gruppensatzes für die Beschreibung des Uranblockexperiments zu grob ist. Ein Vergleich der auf 26 Gruppen kondensierten Spektren einer 208-Gruppen-Rechnung mit einer 26-Gruppen-Rechnung, bei der die Gruppenkonstanten mit dem nulldimensionalen Wichtungsspektrum erzeugt wurden, bestätigt dies (Abb.40). In der Nähe der Quelle kommen die berechneten 26-Gruppen-Spektren dem richtigen Spektrum wesentlich näher als in großen Entfernungen. Dies liegt an der größeren Ähnlichkeit des nulldimensionalen Wichtungsspektrums mit den Uranblockspektren im Natururanteil. Man kann natürlich eine bessere Übereinstimmung der 26-Gruppen- und 208-Gruppenspektren erreichen, wenn man den Uranblock in mehrere Zonen unterteilt und in diesen Zonen Gruppenkonstanten verwendet, die mit einem für die betreffende Zone repräsentativen Wichtungsspektrum erzeugt wurden. Eine wesentliche Verbesserung wird bereits durch Unterteilung des Blocks in zwei Zonen (Natururankonverter, abgereicherter Block) erreicht, wie Abb.40 oben zeigt, jedoch sind etwa 4 Zonen, die eine feinere Unterteilung des vorderen Blockbereichs ermöglichen, notwendig, um eine völlig befriedigende Übereinstimmung auf der gesamten Uranblockachse herbeizuführen.

Um diese Schwierigkeiten zu vermeiden und um energetisch besser aufgelöste Spektren zu erhalten, die für einen Vergleich mit den Messungen geeigneter sind, wurden die meisten der folgenden Untersuchungen daher mit 208-Gruppen-Rechnungen durchgeführt.



Abb.40 Vergleich von 208- und 26-Gruppen-Rechnungen

d) Vergleich von Transport- und Pl-Näherung für die elastische Streuung

Oberhalb von etwa 100 keV Neutronenenergie wächst die Anisotropie der elastischen Streuung an U-238 stark an. Die in Karlsruhe verfügbaren Gruppenkonstantenberechnungsprogramme ermöglichen zur Zeit jedoch nur die Berücksichtigung der Anisotropie in Pl-Approximation oder Transportnäherung. Man kann vermuten, daß für die stark ausgeprägte Vorwärtsstreuung die Transportnäherung die bessere Approximation darstellt. Zur Berücksichtigung der Anisotropie wird der Transferquerschnitt in der Multigruppengleichung(18) nach Legendre-Polynomen entwickelt.

$$\Sigma^{j \rightarrow i} \left(\vec{\alpha}' \cdot \vec{\alpha} \right) = \frac{1}{2\pi} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{2m+1}{2} \sum_{m=0}^{j \rightarrow i} P_{m} \left(\vec{\alpha}' \cdot \vec{\alpha} \right)$$

$$(24)$$

$$\vec{\alpha}' \cdot \vec{\alpha} = \mu_{0} = \mu \cdot \mu' - \left[(1 - \mu^{2}) (1 - \mu')^{2} \cos \left(\varphi - \varphi' \right) \right]$$

Unter Verwendung der Relation

 $P_{m}(\mu_{O}) = P_{m}(\mu) P_{m}(\mu') + 2 \sum_{l=1}^{m} \frac{(m-1)}{(m+1)} P_{m}^{l}(\mu) P_{m}^{l}(\mu') \cos m (\varphi - \varphi')$

erhält man nach Ausführung der Integration für den Streuterm der Gleichung (18):

$$\int_{j=0}^{i} \sum_{j=0}^{j-i} \mu_{0}\psi^{(j)}(z,\mu')d\mu'd\phi' = \int_{j=1}^{i} \int_{m=0}^{\infty} \frac{2m+1}{2} P_{m}(\mu \sum_{m}^{j+i} d\mu'P_{m}(\mu')\psi^{(j)}(z,\mu'))$$
(25)

Die Pl-Näherung erhält man, wenn die Entwicklung (24) nach dem 2. Glied abgebrochen wird. Es verbleiben dann nur das O. und das 1. Moment des Transferquerschnitts:

$$\Sigma_{o}^{j \neq i} = \int_{-1}^{1} \Sigma^{j \neq i} (\mu_{o}) d\mu_{o} \qquad \qquad \Sigma_{1}^{j \neq i} = \int_{-1}^{1} \mu_{o} \Sigma^{j \neq i} d\mu_{o} = \overline{\mu}_{o}^{j \perp} \Sigma_{o}$$

Der Streuterm lautet also:

.

$$\overset{i}{\underset{j=1}{S}} \begin{bmatrix} \frac{1}{2} \sum_{o}^{j \rightarrow i} \cdot \left(\int_{-1}^{1} \psi^{(j)}(z, \mu') d\mu' + 3\overline{\mu}_{o}^{ji} \cdot \int_{-1}^{1} \mu' \psi^{(j)} d\mu' \right) \end{bmatrix}$$
(26)

In der Transportnäherung werden alle folgenden Entwicklungsglieder gleich dem zweiten gesetzt:

$$\begin{split} \Sigma^{j \star i}(\mu_{O}) &= \Sigma_{O}^{j \star i} \frac{1}{2} \left[(1 - \overline{\mu}_{O}^{j \pm}) + 2\overline{\mu}_{O}^{j \pm} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{2m + 1}{2} p_{m}(\mu_{O}) \right] \\ &= \frac{1}{2} \sum_{O}^{j \star i} \left[(1 - \overline{\mu}_{O}^{j \pm}) + 2\overline{\mu}_{O}^{j \pm} \delta(\mu_{O} - 1) \right] \end{split}$$

Physikalisch entspricht dies einer isotropen Streuung, der eine δ -förmige Vorwärtsstreuung überlagert ist. Für den Streuterm erhält man in dieser Näherung:

$$\sum_{j=1}^{i} \left[\frac{1}{2} \sum_{o}^{j \to i} (1 - \overline{\mu}_{o}^{ji}) \int_{-1}^{1} \psi^{(j)}(z, \mu') d\mu' + \sum_{o}^{j \to i} \overline{\mu}_{o}^{ji} \psi^{(j)}(z, \mu) \right]$$
(27)

In der einfachen Transportnäherung trifft man nun weiter die Annahme:

$$\int_{j=1}^{l} \sum_{o}^{j-i} \overline{\mu}_{o}^{ji} \psi^{(j)}(z,\mu) \approx \sum_{o}^{i-i} \overline{\mu}_{o}^{ii} \psi^{(i)}(z,\mu) , \qquad (28)$$

was im allgemeinen für schwere Kerne gut erfüllt ist, und schlägt diesen Term dem Glied $\Sigma_t^{(i)} \psi^{(i)}(z,\mu)$ in der Transportgleichung zu. Die vollständige Transportgleichung in dieser Näherung lautet schließlich:

$$\mu \frac{\partial \psi^{(i)}(z,\mu)}{\partial z} + \left[\sum_{t}^{i} + \sum_{o}^{i \rightarrow i} \mu_{o}^{ii} \right] \psi^{(i)}(z,\mu) = S_{j=1}^{i} \frac{\sum_{o}^{j \rightarrow i} (1 - \tilde{\mu}_{o} \tilde{D}_{ji})}{2} \int_{0}^{1} \psi^{(j)}(z,\mu) d\mu' + S_{j=1}^{i} \frac{1}{2} \int_{0}^{1} \psi^{(j)}(z,\mu) d\mu' + S_{j}^{(i)}(z,\mu) d\mu' + S_{j=1}^{i} \frac{1}{2} \int_{0}^{1} \psi^{(j)}(z,\mu) d\mu' + S_{j}^{(i)}(z,\mu) d\mu' + S_{$$

Es muß betont werden, daß es bisher nur möglich ist, die Anisotropie der <u>elastischen</u> Streuung in den Näherungen 26 und 27 mit den in Karlsruhe verfügbaren Codes zur Berechnung der Gruppenkonstanten zu behandeln. Neuere Messungen⁸⁵ deuten jedoch darauf hin, daß oberhalb etwa 2 MeV auch eine Anisotropie der inelastischen Streuung vorhanden ist, wenngleich der Grad der Anisotropie wesentlich schwächer ist als bei der elastischen Streuung. Aus den genannten Gründen und weil die Daten noch zu unvollständig sind, war es nicht möglich, Rechnungen durchzuführen, um die Auswirkungen der inelastischen Anisotropie auf das Spektrum zu untersuchen.

Die mit den zwei beschriebenen Näherungen für die elastische Anisotropie durchgeführten Rechnungen ergaben eine Übereinstimmung innerhalb ±0.5%. Aufgrund der Verschiedenartigkeit beider Näherungen kann man daher schließen, daß die Auswirkungen der Anisotropie der elastischen Streuung auf die Uranblockspektren sowohl in der Transport- als auch in der PI-Näherung gut erfaßt werden. 5) Der gegenwärtige Stand der Kenntnis der wichtigsten 238 U-Kerndaten, insbesondere von σ_{c} und σ_{r} .

Bevor die Auswirkungen von Querschnittsänderungen auf die Uranblockspektren im Detail untersucht werden, muß zunächst der Stand der gegenwärtigen Kenntnis der wichtigsten U-238-Wirkungsquerschnitte diskutiert werden, um zu zeigen, innerhalb welcher Grenzen realistische Änderungen der Querschnitte durchgeführt werden können. Eine Zusammenfassung der relativ ausführlichen Diskussion findet man am Ende dieses Abschnitts in Tabelle 3.

Die Messung des totalen Wirkungsquerschnitts gehört zu den einfachsten Experimenten der Neutronenphysik, da keine Bestimmung des absoluten Neutronenflusses oder der Detektorempfindlichkeit notwendig ist. Dennoch gab es zwischen einigen Meßergebnissen Diskrepanzen von bis zu 15%, die erst vor kurzem geklärt werden konnten⁸⁶. Neuere Messungen von Kopsch et al.⁸⁷ mit hoher Energieauflösung zwischen 500 keV und 4.35 MeV sowie von Cabe et al.⁸⁸ zwischen O.1 MeV und 6 MeV stimmen im Überlappungsbereich gut überein, und es scheint daher vertretbar zu sein, die Genauigkeit des totalen Querschnitts von U-238 mit etwa 3% anzunehmen⁸⁹.

Viele Bestimmungen des Spaltquerschnitts von U-238 beruhen auf Spaltratenverhältnismessungen $\sigma_f(U-238)/\sigma_f(U-235)$, die wesentlich besser übereinstimmen als Messungen des absoluten Spaltquerschnitts. Für die Genauigkeit der ausgewerteten Spaltratenverhältnismessungen von Lamphere⁹¹, Stein⁹¹ und White et al.⁹² werden in den Kompilationen von Davey⁶³ und Pitterle⁹³ 2-5% angegeben, wobei in dem für die Reaktorphysik wichtigsten Energiebereich zwischen 2 und 5 MeV 2% als realistisch angesehen werden. Neuere Messungen von Meadows und Poenitz⁸⁹ zwischen der Schwellenergie und 5 MeV sind sogar innerhalb von 1% konsistent. Es ist daher evident, daß die Genauigkeit des U-238-Spaltquerschnitts eng mit der Genauigkeit des absoluten Spaltquerschnitts von U-235 verknüpft ist. Es ist darauf

hingewiesen worden⁸⁹, daß historisch gesehen der absolute Spaltquerschnitt von U-235 ständig verringert werden mußte. Bis auf eine Ausnahme⁸⁶ sind jedoch alle in den letzten zehn Jahren durchgeführten Messungen innerhalb von 5% konsistent. Die Poenitzsche Messung⁸⁶ liefert allerdings 20-25% niedrigere Werte als alle übrigen Messungen, und eine befriedigende Erklärung dieser Diskrepanz steht noch aus. In der Kompilation von Davey⁶³, bei der die Poenitzschen Werte noch nicht berücksichtigt werden konnten, wird die Unsicherheit des Spaltquerschnitts zwischen 100 keV und 2 MeV mit etwa 6% angegeben. Messungen, die nach Erscheinen der Veröffentlichungen von Davey in Cadarache ⁹⁴ durchgeführt wurden, bestätigen im wesentlichen die von Davey empfohlenen Werte. Oberhalb 2 MeV gibt es nur sehr wenige Messungen, die jedoch ebenfalls innerhalb von etwa 8% übereinstimmen. Zusammenfassend kann man sagen, daß es unwahrscheinlich ist, daß der Spaltquerschnitt von 235 U und damit auch von 238 U um mehr als 10% von den von Davey⁶³ oder Pitterle⁹³ empfohlenen Werten nach unten abweicht.

Die experimentelle Bestimmung des elastischen Streuquerschnitts von ²³⁸U wird in einem großen Energiebereich durch die inelastische Anregung niederenergetischer Niveaus kompliziert. Flugzeitmessungen mit guter Auflösung ermöglichen eine Trennung von elastisch und inelastisch gestreuten Neutronen nur bis etwa 1 MeV. Darüber hinaus müssen die gemessenen elastischen Streuquerschnitte bezüglich der in ihnen enthaltenen inelastischen Anregungsquerschnitte korrigiert werden. Die Situation wird noch weiter kompliziert durch das Einsetzen der Spaltung und der durch sie verursachten Beiträge zu den gemessenen Streuquerschnitten. Daher wird der elastische Streuquerschnitt in Kompilationen häufig aus der Differenz zwischen dem totalen und dem nichtelastischen Querschnitt berechnet⁹⁵ und dazu benutzt, um Kosistenz zwischen dem totalen Querschnitt und den Partialquerschnitten herzustellen.

Alle neueren differentiellen Messungen der Spaltspektren von ²³⁵U und ²³⁸U bestätigen, daß die Spaltspektren sehr gut durch Maxwell- oder Wattverteilungen approximiert werden können⁹⁶. Die mittleren Energien der gemessenen Spaltspektren liegen bei etwa 2 MeV, wobei Abweichungen um ±100 keV im allgemeinen die obere Grenze darstellen. Eine starke Abhängigkeit der mittleren Spaltneutronenenergien von der Primärneutronenenergie kann aus den Messungen nicht abgeleitet werden. Im Gegensatz zu den differentiellen Messungen ergeben von Grundl⁹⁷ und McElroy⁹⁸ durchgeführte integrale Bestimmungen der mittleren Spaltneutronenenergie um 20% höhere Werte. In diesen Messungen sind jedoch nicht nur die Spaltneutronenspektren, sondern auch in empfindlicher Weise die Querschnitte der benutzten Detektoren involviert. Eine befriedigende Erklärung der großen Diskrepanzen zwischen differentiellen und integralen Messungen konnte bisher jedoch nicht gefunden werden⁹⁶.

Der ²³⁸U-Einfangquerschnitt ist einer der wichtigsten Querschnitte für die Berechnung schneller Reaktoren, und daher gibt es eine Vielzahl von Messungen zu seiner Bestimmung, insbesondere in dem wichtigsten Energiebereich von 1 keV bis 1 MeV. Von einer befriedigenden Genauigkeit ist man jedoch immer noch weit entfernt, und das Ziel, den Einfangquerschnitt auf 1% genau zu bestimmen, scheint in der nahen Zukunft unerreichbar. Einige der wichtigsten neueren Messungen von $\sigma_{\alpha}(U-238)$ sind in Abb.41 zusammengestellt. Die großen Diskrepanzen sind evident, sie betragen zwischen den rohen Daten bis zu 40%. Davey⁹⁹ hat jedoch in einer ausführlichen und umfassenden Auswertung sämtlicher bis 1969 verfügbarer Messungen gezeigt, daß die tatsächliche Diskrepanz zwischen den zuverlässigen Messungen geringer ist, wenn man sie auf jeweils den gleichen Referenzquerschnitt, im allgemeinen den Spaltquerschnitt von ²³⁵U, bezieht. Seine Auswertung liefert daher vor allem konsistente Einfang- und Spaltquerschnitte. Sie basiert hauptsächlich auf den ²³⁵U-Spaltquerschnittsmessungen von White⁹² und den Einfangquerschnittsmessungen von Barry, Bunce und White¹⁰⁰. Die Neutronenintensität wurde bei den White'schen Spaltquerschnittsmessungen mit einem Wasserstoff-gefüllten Proportionalzähler bestimmt, während bei den Einfangratenmessungen die ²³⁸U-Proben zwischen zwei geeichten ²³⁸U-Spaltkammern lagen. Die Einfangrate selber wurde aus der β -Aktivität des chemisch separierten ²³⁹Np bestimmt. Es i**s**t daher fraglich, ob die Einfangquerschnittsmessungen von gleich hoher Qualität wie die Spaltquerschnitts-



<u>Abb.41</u> Gemessene Einfangquerschnitte von 238 U

messungen sind. Die relativ starke Streuung der Meßwerte von Barry et al. in Abb.41 und die auch von Davey empfohlene Nichtberücksichtigung der Daten bei 127 und 160 keV lassen dies zweifelhaft erscheinen. Dennoch stimmen neuere Messungen des ²³⁸U-Einfangraten- zu ²³⁵U-Spaltratenverhältnisses von Poenitz⁸⁶ mit den Ergebnissen von Barry et al. überein.

Die Einfangquerschnittsmessungen von Menlove und Poenitz¹⁰¹ liegen etwa 18% unter den Werten von Barry. Für diese Messungen wurde ein "grauer" Neutronendetektor zur Bestimmung der Flußschwankungen mit der Neutronenenergie benutzt. Bei den ²³⁵U-Spaltquerschnittsmessungen von Poenitz⁸⁶ wurde der gleiche "graue" Neutronendetektor verwendet, und es ergaben sich zu den Whiteschen Messungen Abweichungen von der gleichen Größenordnung. Davey hat daher den von Poenitz gemessenen Einfangquerschnitt mit dem von ihm empfohlenen Spaltquerschnitt neu normiert. Nur schwer lassen sich die Messungen von Moxon¹⁰² und Macklin et al.¹⁰³ in das Schema von Davey einordnen. Diesen Messungen korrespondieren keine Messungen des Spaltquerschnitts mit derselben Methode. Die Messungen von Moxon wurden relativ ${}^{10}_{B(n,\alpha)}{}^{7}_{Li}$ -Querschnitt durchgeführt, sie liegen systemazum tisch um mindestens 15% unter allen anderen Daten, während die Messungen von Macklin et al. relativ zum Ta-Einfangquerschnitt durchgeführt wurden und um etwa den gleichen Betrag oberhalb der Daten von Menlove und Poenitz liegen. In beiden Arbeiten wurden die ²³⁸U-Einfanggammas bzw. die ⁷Li^{*}- oder Ta-Einfanggammas mit einem Moxon-Rae-Detektor gemessen¹⁰⁴. Davey hat die Daten von Moxon lediglich zur Beschreibung der genauen Form des Querschnittsverlaufs benutzt und sie dazu auf die Werte von Menlove und Poenitz normiert. Die Meßergebnisse von Macklin et al. mußten von Davey ebenfalls um 5-8% reduziert werden, da er nachweisen konnte, daß Fehler im Verlauf des von den Autoren verwendeten Ta-Querschnitts existierten. Der aus den neuen normierten Daten von Davey gewonnene Einfangquerschnitt ist in Abb.41 als gestrichelte Kurve eingezeichnet. Zwei im Jahre 1970 veröffentlichte Messungen konnten bei der Auswertung von Davey noch nicht berücksichtigt werden. Die Messung von

Panitkin et al.¹⁰⁵ wurde relativ zum ²³⁵U-Spaltquerschnitt von Davey durchgeführt, wobei die Einfanggammas direkt mit einem Ge(Li)-Detektor gemessen wurden. Die Werte dieser Messung liegen bis 65 keV auf der von Davey empfohlenen Kurve, sind jedoch zwischen 70 und 100 keV erheblich höher. Die Messung von Fricke et al.¹⁰⁶ liefert mittlere Einfangquerschnitte über einen außerordentlich großen Energiebereich von 1 keV bis etwa 1 MeV. Tatsächlich wurde die Messung zu Eichzwecken zu noch kleineren Energien bis 2 eV herunter erstreckt und durch Normierung auf aufgelöste Einfangresonanzen im eV-Bereich der absolute Einfangquerschnitt bestimmt. Die Werte von Fricke et al. liegen im Energiebereich unterhalb 30 keV um bis zu 15% unter den von Davey empfohlenen Daten. Sie stimmen im gesamten gemeinsamen Energiebereich mit den Messungen von Menlove und Poenitz ausgezeichnet überein, liegen jedoch systematisch um etwa 10-12% oberhalb der Ergebnisse von Moxon und um mehr als 20% unterhalb der Meßwerte von Barry et al. Man kann daraus schließen, daß die Unsicherheit des Einfangquerschnitts immer noch recht groß ist und daß Änderungen um 20% in manchen Energiebereichen nicht unrealistisch sind.

Bei der Diskussion des inelastischen Streuquerschnitts von ²³⁸U muß man drei Energiebereiche unterscheiden: Im Energiebereich von 45 keV - der Energie des ersten Niveaus - bis 1.5 MeV existieren Flugzeitmessungen mit guter Auflösung für die Anregungsquerschnitte der einzelnen Energieniveaus. Das Niveauschema dieses Energiebereichs ist aus Coulomb-Anregungsmessungen, Flugzeitmessungen und Messungen mit Ge(Li)-Detektoren relativ gut bekannt. Die Energiewerte der 25 aufgelösten Niveaus sowie ihre Spins und Paritäten sind in Tabelle 2 zusammengestellt.

Niveau Nr.	Anregungsenergie (keV)	Spin	Parität
Grundzustand	0.0	0	+
1	44.7	2	+
2	148.0	4	+
3	301.	6	+
4	520.	8	+
5	680.	1	-
6	732.	3	_
7	790.	10	+
8	838.	5	-
9	939.	2	+
10	968.	2	+
11	1006.	0	+
12	1047.	2	+
13	1076.	2	+
14	1100.	12	+
15	1123.	1	-
16	1150.	2	-
17	1190.	3	-
18	1210.	2	+
19	1246.	4	-
20	1272.	5	-
21	1313.	2	+
22	1361.	2	+
23	1401.	2	+
24	1437.	14	+
25	1470.	1	-

<u>Tabelle 2</u> (von 107) Energieniveaus von 238 U

Da der Anregungsquerschnitt des 301 keV-Niveaus sehr klein ist und Anregungen des 520 keV-Niveaus durch inelastische Neutronenstreuung bisher überhaupt noch nicht beobachtet wurden, wird der totale inelastische Streuquerschnitt bis etwa 700 keV durch die Summe der Anregungsquerschnitte des 44.7- und des 148 keV-Niveaus gebildet. Flugzeitmessungen für beide Niveauquerschnitte

mit guter Auflösung und für eine ausreichend große Zahl von Energiepunkten wurden von A.B. Smith^{108,109} und Barnard et al. 110,111 durchgeführt. Smith verwendete für seine Messungen Flüssigkeitsscintillatoren, deren relative Empfindlichkeit mit einem Long-counter bestimmt worden waren. Die absoluten Querschnitte wurden bezüglich des gut bekannten elastischen Streuquerschnitts von Kohlenstoff gemessen. Meßwerte wurden für das 44.7 keV-Niveau zwischen 350 keV und 1.2 MeV und für das 148 keV-Niveau zwischen 400 keV und 1.5 MeV erhalten. Barnard et al. benutzten bei ihren Messungen 2.5 cm dicke Plastikscintillatoren, deren relative Empfindlichkeit gleichfalls bezüglich eines Long-counter bestimmt worden war. Bei ihrem 1965 durchgeführten Experiment¹¹⁰ wurden die absoluten Querschnitte durch direkte Messung des Neutronenstrahls (ohne Probe) mit dem Plastikscintillator gewonnen, wobei Intensitätsschwankungen im Verlauf weiterer Messungen bei derselben Neutronenenergie mit einem Monitor überwacht wurden. Bei ihren 1970 publizierten Messungen¹¹¹ benutzten sie jedoch gleichfalls den elastischen Streuquerschnitt von Kohlenstoff als Referenzquerschnitt. Die Verwendung eines Detektors mit einer Neutronenenergieschwelle von etwa 50 keV ermöglichte Messungen der inelastischen Querschnitte bis etwa 100 keV oberhalb der Schwelle. Die Daten für das 44.7 keV-Niveau reichen daher bis etwa 150 keV herunter, während Meßwerte für das 148 keV-Niveau bis etwa 400 keV Neutronenenergie erhalten wurden. Die oberen Grenzen lagen bei den Barnardschen Messungen bei 800 keV bzw. 1 MeV. Die Meßergebnisse sind für beide Niveaus in Abb.42 dargestellt. Während die älteren Barnardschen Messungen mit den Smithschen Messungen im Überlappungsbereich innerhalb der recht großen Fehlergrenzen gut übereinstimmen, liegen die neueren Barnardschen Messungen des 44.7 keV-Niveaus beträchtlich (bis zu 50%) darüber. Diese großen Diskrepanzen hängen sicher mit der experimentell schwierigen Trennung von elastischer Streuung und inelastischer Streuung zum 45 keV-Niveau zusammen, möglicherweise ist aber auch eine der Ursachen in der Empfindlichkeit des Plastikscintillators zu suchen, die zu kleinen Energien hin stark abfällt, so daß eine genaue Ener-



 $\frac{\text{Abb.42}}{148 \text{ keV-Niveaus von }} \text{Inelastische Anregungsguerschnitte des 44.7 und des }$

gieeichung äußerst wichtig wird. Über die genannten Meßbereiche hinaus müssen die beiden Niveauquerschnitte durch kerntheoretische Berechnungen, bei denen meist das optische Modell zugrunde gelegt wird, extrapoliert werden. Insbesondere die Extrapolation zu höheren Energien hin ist jedoch mit großen Unsicherheiten behaftet, da der Verlauf der Anregungsquerschnitte der unteren Niveaus bei höheren Energien entscheidend vom Verhältnis der Reaktionen abhängt, die über Compound-Kernbildung oder über direkte Anregung der Rotationszustände des deformierten Kerns ablaufen¹¹². Dieses Verhältnis beeinflußt auch den Grad der Anisotropie der inelastischen Streuung bei höheren Energien. Bei den Energiewerten der Messungen von Barnard und Smith wurde nur schwache oder gar keine Anisotropie beobachtet. Für die Energieniveaus zwischen 700 keV und etwa 1.1 MeV bestimmen die Messungen von Barnard et al. und Smith den Verlauf der Anregungsquerschnitte von etwa 150 keV oberhalb der Niveauenergie bis maximal 1.6 MeV Neutronenenergie noch relativ gut; ±20% müssen jedoch auch für diese Niveauquerschnitte Fehler von als realistisch angesehen werden. Die wenigen Meßpunkte, die für Energieniveaus oberhalb 1.1 MeV existieren, lassen jede Anpassung als außerordentlich willkürlich erscheinen.

Die großen Fehler der partiellen inelastischen Anregungsquerschnitte übertragen sich natürlich auch auf den totalen inelastischen Querschnitt, obwohl jedoch häufig die Summen der Anregungsquerschnitte von eng benachbarten Niveaus, insbesondere oberhalb 1.1 MeV, bei den zitierten Messungen besser übereinstimmen als die Einzelquerschnitte. Die Zusammensetzung des totalen inelastischen Streuquerschnitts aus den Partialquerschnitten wird in Abb.43a gezeigt.Die Querschnitte dieser Darstellung sind der Kompilation von J.J. Schmidt⁹⁵ entnommen, die hauptsächlich auf den älteren Messungen von Barnard et al.¹¹⁰ beruht. Die große Zahl der von Barnard gefundenen relativ hohen Partialquerschnitte oberhalb 1 MeV führt zu einem breiten Maximum des totalen inelastischen Streuguerschnitts bei 1.65 MeV. Die Größenordnung des Fehlers des totalen inelastischen Streuquerschnitts in dem hier diskutierten Energiebereich bis 1.5 MeV wird von J.J. Schmidt⁹⁵ mit ±20% angegeben, was jedoch in Anbetracht der neueren Messungen als zu optimistisch angesehen



Abb.43 a Totaler inelastischer Streuquerschnitt von ²³⁸U und Partialquerschnitte bis 1.2 MeV Niveauenergie



Abb.43b Totaler inelastischer Streuquerschnitt von ²³⁸U oberhalb 3 MeV

werden muß. Insbesondere ist der Fehler bei 1.6 MeV Neutronenenergie, wo die Daten sehr spärlich sind und überhaupt keine Messungen der Anregungsquerschnitte der unteren Energieniveaus vorliegen, sicher wesentlich größer. Einen realistischeren Eindruck der Unsicherheit vermittelt vielleicht die gleichfalls in Abb. 43apunktiert eingetragene Kurve des 1962 von J.J. Schmidt empfohlenen totalen inelastischen Querschnitts. Fehler im Maximum von 30 bis 40% scheinen daher nicht ausgeschlossen. Die Kugelschalentransmissionsmessungen zur Bestimmung des inelastischen Querschnitts sind in diesem Energiebereich gleichfalls recht ungenau, da eine befriedigende Trennung von elastisch und inelastisch gestreuten Neutronen in diesen Experimenten meist nicht möglich ist. Eine Korrektur der Meßergebnisse für die inelastische Streuung zu den unteren Energieniveaus ist schwierig, da der Anteil der mitgemessenen inelastisch, gestreuten Neutronen nicht genau bestimmt werden kann.

Im Energiebereich von 1.5 MeV bis etwa 3 MeV konkurrieren die Anregungsquerschnitte der diskreten aufgelösten Niveaus mit den Anregungsquerschnitten der als kontinuierlich zu betrachtenden höheren Energieniveaus. Die Energieverteilung der gestreuten Neutronen setzt sich zusammen aus den Neutronen, die unter Anregung der diskreten niederenergetischen Niveaus gestreut wurden und Neutronen mit quasi kontinuierlichen Energieverlusten durch Streuung an den höheren Energieniveaus. Die Energieverlustverteilung der letzteren muß mit Hilfe von statistischen Kernmodellen berechnet werden, während die Energieverlustverteilung der ersteren aus den zu höheren Energien hin extrapolierten gemessenen Anregungsquerschnitten bestimmt werden muß.

Im Energiebereich oberhalb etwa 3 MeV sind die Voraussetzungen für die Anwendungen des Verdampfungsmodells gut erfüllt, und man kann allein mit der kontinuierlichen Energieverlustverteilung rechnen. Für die Energieverteilung der gestreuten Neutronen erhält man in diesem Modell unter stark vereinfachenden Annahmen:

$$N(E) \sim E e^{-E/\Theta}$$
(28)

0 ist hierbei die sogenannte Kerntemperatur, die von der Energie der reagierenden Neutronen abhängt.

$$\Theta(E_n) = \left(\frac{E_n}{\gamma A}\right)^{1/2}, \qquad \begin{array}{c} E_n \text{ in MeV} \\ \gamma \text{ in MeV}^{-1} \end{array}$$
(29)

wobei A das Atomgewicht und γ ein freier Parameter ist, der durch Anpassung an gemessene Verteilungen bestimmt werden kann.

Die Auflösung diskreter Energieniveaus in den Energiebereichen 2) und 3) ist mit der Flugzeitmethode nicht möglich. In der elastisch gestreuten Komponente dieser Messungen sind auch die inelastisch gestreuten Neutronen der unteren Energieniveaus (häufig bis 500 keV) enthalten. Eine weitere Schwierigkeit bei diesen Messungen tritt dadurch auf, daß die Energieverteilung der gestreuten Neutronen von der Energieverteilung der Spaltneutronen überlagert wird. Letztere müssen daher durch Extrapolation der bei hohen Neutronenenergien angepaßten Wattoder Maxwellverteilung zu niedrigeren Energien hin subtrahiert werden. Dazu muß die Intensität der Spaltneutronen oberhalb des elastischen Peaks genügend groß sein. Kugelschalentransmissionsmessungen besitzen prinzipiell die gleichen Schwierigkeiten wie Flugzeitmessungen, nämlich Überlagerung von elastisch und inelastisch gestreuten Neutronen; dennoch gelingt bei höheren Neutronenenergien die Trennung der beiden Komponenten besser als bei niedrigen Energien, da die unteren Energieniveaus nur noch schwach angeregt werden. Daher stimmen Flugzeitmessungen und Kugelschalentransmissionsmessungen im Energiebereich oberhalb 2 MeV wesentlich besser überein als darunter. Die wichtigsten Flugzeitmessungen oberhalb 2 MeV sind diejenigen von Cranberg und Levin¹¹³, Knitter et al.⁸⁵ und Batchelor et al.¹¹⁴; unterhalb 2.5 MeV liefern diese Messungen inelastische Anregungsquerschnitte für Gruppen von Energieniveaus zwischen 0.5 und 0.9 MeV sowie 0.9 und 1.35 MeV. Die Summe dieser Anregungsquerschnitte stimmt bei den zitierten Messungen gut überein, jedoch müssen sie teilweise um mehr als 100% für nicht

gemessene Energieniveaus korrigiert werden, wodurch die Werte des totalen inelastischen Querschnitts natürlich sehr unsicher werden. Wenn man jedoch annimmt, daß die bei diesen Flugzeitmessungen ebenfalls bestimmten elastischen Streuquerschnitte nur geringe Anteile der inelastisch gestreuten Neutronen enthalten, so kann man den totalen inelastischen Querschnitt aus der Differenz zwischen dem totalen sowie dem elastischen, dem Spaltund dem Einfangquerschnitt berechnen:

$$\sigma_{n'} = \sigma_t - \sigma_e - \sigma_f - \sigma_\gamma$$

Das Problem dieser Auswertung besteht darin, daß der elastische Streuquerschnitt von ²³⁸U zu kleinen Winkeln hin stark anwächst und daß daher für eine genaue Auswertung sehr viele Meßpunkte bei kleinen Winkeln notwendig sind. Dies mag der Grund dafür sein, daß die Meßergebnisse von Knitter et al. so stark von den Werten von Batchelor et al. abweichen, wie Abb.43bzeigt. Neben diesen Daten sind auch die Ergebnisse einiger Kugelschalentransmissionsmessungen in Abb.43 eingetragen. Der Fehler des durch diese Messungen definierten Verlaufs des totalen inelastischen Querschnitts wird von J.J. Schmidt⁹⁵ mit ±20% angegeben, was in Anbetracht der erheblichen Streuung der Meßpunkte vielleicht etwas zu optimistisch ist.

n,2n- und n,3n-Prozesse spielen im Uranblock eine geringe Rolle, da die Querschnitte dieser Reaktionen erst oberhalb 7 bzw. 12 MeV beträchtliche Werte erreichen, wo nur noch wenige Neutronen im Spektrum vorhanden sind.

Die wesentlichen Ergebnisse dieses Abschnitts wurden nochmals in Tabelle 3 zusammengefaßt. Sie sind die Basis für die im folgenden Abschnitt beschriebenen Untersuchungen der Empfindlichkeit der Uranblockspektren gegen Kerndatenänderungen sowie die Ableitung von empfohlenen Querschnitten aus dem Vergleich von gemessenen und berechneten Spektren in Abschnitt 10.

Kerndatentyp (Wirkungsquerschnitt)	Energiebereich	zuverlässige neuere diff. Messungen	größte Unterschiede zwischen den neueren Messungen	Abweichungen zwischen neueren Auswertungen und KEDAK	wahrscheinliche Änderungen der KEDAK-Daten	erwinschte Genauigkeit ⁶²
σ _t (U-238)	10 keV- 10 MeV	Kopsch et al. ⁸⁷ (0.5-4.35 MeV) Cabe et al. ⁸⁸ (0.1-6 MeV)	6%	ENDF/BIII ⁹³ : zwischen 200 keV und 0.6 MeV, max. 5% höher	Erhöhung um weniger als 5% zwischen 0.2 und 0.6 MeV	1%
σ _f (U-235) 10 k	10 keV-1.5 MeV	bis 1967 s. Davey63 Poenitz ⁸⁶ (30 keV-1.47 MeV)	weniger als 5% für alle seit 1962 durchgeführten Messungen; Ausnahme: Poenitz ⁸⁶ , 20%-25% un- terhalb der übrigen Messungen 10 - 15%	Davey ⁶³ : nur geringe Unter- schiede (2-3%)	keine	1-3%
	1.5 MeV- 10 MeV	s. Davey ⁶³		Davey ⁶³ : 10-15% unterhalb der KEDAK-Werte	Reduktion um maximal 10 - 15 %	1-3%
σ _f (U-238)	1.5 MeV- 10 MeV	nur Relativmessungen bzgl. $\sigma_f(U-235)$: Lamphere ⁸⁹ , Stein et al. ⁹⁰ , White et al. ⁹¹ , Meadows ⁸⁹	2-5% zwischen den Relativmessungen	Davey und ENDF/BIII: 10-15% unterhalb der KEDAK- Werte	Reduktion um maximal 10-15% zwischen 1.5 und 6 MeV	38
x (U-235) χ (U-238)	100 keV- 10 MeV	s. Ref. 96	Unterschiede in den mittleren Energien: zwischen diff. Messungen: 5-7% zw. diff.u.integr.Mess.: 20%	Die in Ref. 96 berechneten Mittelwerte über alle diff. Messungen stimmen gut mit den KEDAK-Werten überein	keine	2% in den mittleren Energien
σ _c (U-238)	10 keV-100 keV	bis 1969 s. Davey ⁹⁹ Panitkin et al.105 (24 keV - 145 keV) Fricke et al.106	30-40% bei 10 keV 20% zwischen 50 und 100 keV	Davey und ENDF/BIII: zwischen 10 und 35 keV maximal 13% unterhalb, zwischen 35 und 60 keV maximal 6% oberhalb, zwischen 60 und 180 keV maximal 10-12% unterhalb	Reduktion um etwa 25% unterhalb 40 keV und um 10-12% oberhalb 70 keV	28
	100 keV- 1 MeV	2 eV - 750 keV)	20%	zwischen 200 keV und 500 keV 5% oberhalb der KEDAK-Daten	Reduktion um 15% im gesamten Energiebereich	28
^σ n,n [,] (U−238)	45 keV-0.8 MeV	Barnard et al.110,111 (100 keV-1.6 MeV) A. B. Smith108 (130 keV-1.7 MeV)	bis zu 50% beim 45 keV-Niveau- querschnitt, 20% für die übrigen Anre- gungsguerschnitte	ENDF/BIII: nur geringe Unter- schiede (5%)		
	0.8 MeV- 2 MeV		schen Streuguerschnitt	ENDF/BIII: zwischen 1.4 und 1.9 MeV liegt der totale in- elastische Streuquerschnitt um maximal 8% unterhalb	Reduktion um 15-20%	5%
	2 MeV- 8 MeV	s. Abb. 43	bis zu 50% im totalen inelasti- schen Streuquerschnitt	ENDF/BIII: weniger als 5% oberhalb;	totaler inelastischer Streuquerschnitt: keine;	

Tabelle 3 Gegenwärtige Genauigkeit der für die Interpretation der Uranblockspektren wichtigsten Urankerndaten

6) Empfindlichkeit der axialen Neutronenspektren gegen Änderungen der ²³⁸U-Kerndaten

Ausgehend von den KEDAK-Daten wurden, orientiert an den im Abschnitt 5 diskutierten Fehlergrenzen, systematische Änderungen der einzelnen Wirkungsquerschnitte durchgeführt und deren Auswirkungen auf die axialen Spektren untersucht. Das Verhältnis der relativ alten KEDAK-Daten, die zum Teil noch auf der Kompilation von J.J. Schmidt aus dem Jahre 1966 beruhen⁹⁵, zu den in Abschnitt 5 beschriebenen neueren Messungen ist für die wichtigsten ²³⁸U-Querschnitte aus den Abbildungen 41 und 43 sowie Tabelle 3 erkennbar. Die totalen Querschnitte von ²³⁸U auf KEDAK weichen nur geringfügig von den besten gegenwärtigen Messungen ab. Sie bleiben daher bei allen Untersuchungen unverändert. Wenn folglich ein Querschnittstyp geändert wird, so muß ein zweiter um den gleichen Betrag jedoch in entgegengesetzter Richtung geändert werden, um die Summe konstant zu halten. Hierfür wurde stets aus den in Abschnitt 5 genannten Gründen der elastische Streuquerschnitt gewählt. Der ²³⁸U-Spaltquerschnitt auf KEDAK stimmt mit den von Davey⁶³ empfohlenen Werten gut überein und liegt etwa 10 bis 15% oberhalb der neuen ENDF/BIII-Daten⁹³. Der Spaltquerschnitt von ²³⁵U liegt nur im Energiebereich oberhalb 2 MeV um etwa 10% über den empfohlenen Werten anderer Auswertungen. Da in diesem Energiebereich jedoch keine neueren Messungen vorliegen, ist dieser Unterschied allein durch die Methode der Auswertung und die unterschiedliche Wichtung der einzelnen Messungen bedingt. Der KEDAK-Einfangquerschnitt (Abb.41) liegt zwar in einigen Energiebereichen erheblich über den Werten neuerer Messungen, jedoch nicht völlig außerhalb der durch die Gesamtzahl der zuverlässigen Messungen abgesteckten Grenzen. Der inelastische Streuquerschnitt auf KEDAK (Abb.43) schließlich ist in Anbetracht der relativ großen Fehler kompatibel mit allen neueren Messungen. Man kann daher die KEDAK-Daten als vernünftige Ausgangsbasis für die weiteren Untersuchungen betrachten.

Das Maximum der Uranblockspektren verschiebt sich bei Fortschreiten entlang der Achse allmählich von etwa 500 keV nach 40 keV (Abb.32). Entsprechend wächst das Spaltratenverhältnis $\sigma_{f}(U-235)/\sigma_{f}(U-238)$ nach Abklingen des thermischen Flusses von etwa 100 auf 500 in 15 bzw. 70 cm Entfernung von der Quelle an. In 15 cm von der Quelle finden daher etwa doppelt so viele Spaltungen im 238 U wie im 235 U statt, während sich dieses Verhältnis im Gleichgewichtsbereich umkehrt. Der Einfluß von Änderungen der Spaltquerschnitte und Spaltspektren beider Isotope auf die Uranblockspektren wird daher etwa gleich groß sein. 85% der Spaltungen an ²³⁸U finden im Energlebereich von 1.5 bis 6.5 MeV statt. Eine Reduktion des 238U-Spaltquerschnitts in diesem Energiebereich um bis zu 15% führt zu einer Reduktion des Spektrums oberhalb 1 MeV von maximal 5%. In entsprechender Weise ergab eine Reduktion des 235 U-Spaltquerschnitts um bis zu 15% zwischen 100 keV und 1 MeV eine Verringerung der Intensität im Neutronenspektrum oberhalb 1 MeV von höchstens 4% (Abb.45). Die Änderungen waren in geringerer Entfernung von der Quelle kleiner als in größerer Entfernung, entsprechend dem Beitrag der ²³⁵U-Spaltungen zur gesamten Spaltquelle. Das Spaltspektrum ist auf KEDAK in Form eines Watt-Spektrums mit denselben Parametern für ²³⁵U und ²³⁸U gespeichert: $\chi(E) \sim \exp(-E/0.965) \sinh 2.29E$. Die Einführung eines wesentlich härteren Maxwellspektrums $\chi(E) \sim E \exp(-E/1.4)$ mit einer mittleren Energie von 2.1 MeV führt nur im Energiebereich oberhalb 4 MeV zu entsprechenden Änderungen in den Uranblockspektren. Dies ist einerseits auf die Tatsache zurückzuführen, daß die Spaltquelle in der Multigruppengleichung 18 erst für Energien oberhalb etwa 1.5 MeV die Neutronenbilanz entscheidend mitbestimmt, andererseits wirkt sich eine Änderung der mittleren Energie der Spaltneutronen erst bei Energien oberhalb 2 MeV um mehr als 10% auf das Spaltspektrum aus. Wenn folglich die Form des Spaltspektrums nicht wesentlich von der eines Maxwell- oder Wattspektrums abweicht, so führt eine Härtung erst bei Neutronenengien von einigen MeV zu wesentlichen Änderungen in den Uranblockspektren. In ähnlicher Weise wie eine Variation der Spaltquerschnitte verändert auch eine Variation der mittleren Neutronenanzahl V pro Spaltung die gesamte Spaltquelle. Man kann daher schließen, daß eine 2-4%ige Änderung von ν die Uranblockspektren oberhalb 1 MeV um ungefähr gleiche Beträge ändern wird.

Die Diskussion in Abschnitt 5 hat gezeigt, daß der Einfangquerschnitt von ²³⁸U auf KEDAK vermutlich zu hoch ist und zwar insbesondere im Energiebereich unterhalb 30 keV und zwischen 70 keV und mindestens 500 keV. Daher wurde der Einfangquerschnitt zunächst so reduziert, daß sein neuer Verlauf zwischen 45 keV und 100 keV den Moxonschen Meßwerten 102 und zwischen 100 keV und 300 keV den Ergebnissen von Menlove und Poenitz¹⁰¹ entsprach. Aus Abb.44 erkennt man, daß dieser mit Scapt 1 bezeichnete Querschnitt die KEDAK-Werte um maximal 25% reduziert. Die daraus resultierende Spektrumsänderung zeigt wiederum die Abb.45. Man erhält eine Erhöhung der Intensität von maximal 35% bei 13 keV. Wichtig ist, daß das Maximum der Spektrumsänderung nicht mit dem Maximum der Querschnittsänderung zusammenfällt und daß die Spektrumsänderung wesentlich größer als die Querschnittsänderung ist. Der Grund hierfür liegt in folgendem: Je mehr elastische oder inelastische Moderationsstöße ein Neutron zur Überbrückung des Energiebereichs der Querschnittsänderung benötigt, desto größer wird die Wahrscheinlichkeit seines Einfangs. Eine gleichmäßige Reduktion des Einfangquerschnitts zwischen 45 keV und 300 keV bewirkt daher ein zu niedrigen Energien hin ständiges Anwachsen der relativen Neutronenintensität in diesem Energiebereich.

Das Neutron verläßt das betrachtete Energieintervall mit größter Wahrscheinlichkeit durch einen inelastischen Stoß, bei dem das 45 keV-Niveau angeregt wird. Daher tritt die maximale Änderung des Spektrums nicht am Ende des Energiebereichs, sondern erst bei etwa 13 keV auf. Eine Erhöhung des Spektrums zwischen 10 keV und 100 keV bewirkt unter anderem auch eine erhöhte Anzahl von ²³⁵U-Spaltungen, was wiederum Rückwirkungen auf das Spektrum oberhalb 1 MeV hat. Damit ist das Verhalten des in Abb.45 dargestellten Spektralverhältnisses qualitativ erklärt. Im Gegensatz zu dem eben diskutierten Fall führt eine Reduktion des Einfangquerschnitts um 20% oberhalb 800 keV (Scapt2 in Abb.44)





Abb.45 Verhältnisse von theoretischen Spektren, berechnet mit veränderten und unveränderten KEDAK-Querschnitten; die Spektren wurden zwischen 10 keV und 10 MeV normiert.

nur zu geringen Spektrumsänderungen. Einfang ist in diesem Energiebereich ein sehr unwahrscheinlicher Prozeß, da einmal der Betrag des Querschnitts sehr stark abnimmt und die Neutronen zum anderen nur wenige Stöße zur Überbrückung des Energiebereichs benötigen. Weiterhin wurde eine Änderung des Einfangquerschnitts unterhalb 150 keV untersucht, die sich sehr eng an den von Davey⁹⁹ empfohlenen Verlauf anlehnt (Scapt3 in Abb.44). Dies bedeutet, wie man aus Abb.44 erkennt, eine Erhöhung des Einfangguerschnitts von maximal 15% zwischen 40 keV und 70 keV und eine Reduktion unterhalb 25 keV und zwischen 80 keV und 150 keV. Die daraus resultierende Spektrumsänderung (Abb.45) führt zu einer Erhöhung der Intensität von maximal 5% bei 80 keV, zu einer Erniedrigung von 8% bei 40 keV und erneut zu einer Erhöhung von 18% bei 10 keV und maximal 25% zwischen 5 und 6 keV. Alle Änderungen des Einfangquerschnitts wirken sich in größerer Entfernung von der Quelle stärker aus als in geringer Entfernung; daher zeigt auch das Verhältnis der Spektrenverhältnisse für die Positionen 8 und 28 (d.h. 8 inch (20.3 cm) bzw. 28 inch (71 cm) von der Quelle entfernt) eine deutliche Struktur. Die Empfindlichkeit der Uranblockspektren gegen Änderungen des totalen inelastischen Streuquerschnitts wurde für drei in Abb.46 dargestellte Querschnittsverläufe untersucht. Der mit S|1 bezeichnete Querschnitt extrapoliert den glatten Verlauf der KEDAK-Daten unterhalb 400 keV zu höheren Energien und beseitigt damit die wellige Struktur des Ausgangsquerschnitts. Um 1.6 MeV herum bedeutet dies eine Reduktion der Werte des totalen inelastischen Streuquerschnitts um 25%. Die durch S|1 beseitigte Struktur von σ_n , wird im Verhältnis der beiden Spektren reproduziert (Abb.47). Im Gegensatz zu den Verhältnissen bei σ tritt die maximale spektrale Änderung bei der Energie der maximalen Querschnittsänderung ein. Sie ist in Position 8 etwas größer als in Position 28, dafür jedoch in Position 8 stärker auf den Energiebereich der Querschnittsänderung beschränkt als in Position 28. Ein Vergleich der beiden in Abb.47 dargestellten Spektrenverhältnisse zeigt daher einen Buckel von nahezu 20% bei 1.6 MeV und eine 8%ige Erniedrigung unterhalb 700 keV. Unterhalb 400 keV sind die spektralen Änderungen an sämtlichen Orten auf der Uranblock-



 $\underline{\rm Abb.46}$ KEDAK und untersuchte Veränderungen des totalen inelastischen Streuquerschnitts von $^{238}{\rm U}$



achse klein. Man erhält lediglich eine geringfügig, um 3-5% abnehmende Neutronenintensität im untersuchten Energiebereich. Der Grund hierfür ist, daß die Neutronenintensität im Bereich größerer Querschnittsänderungen bereits sehr gering und der Einfangquerschnitt dort sehr klein ist.

Die relativ willkürliche drastische Reduktion S|2 (Abb.46) des totalen inelastischen Querschnitts zwischen 400 keV und 6.5 MeV führt zu einer entsprechend drastischen Veränderung der Spektren. Die Spektren werden nun nicht nur im Energiebereich der Querschnittsänderungen erheblich erhöht, sondern darüber hinaus auch im gesamten darunter liegenden Energiebereich, in Position 8 um 10% und in Position 28 sogar um 20%, erniedrigt. Letzteres wird nicht allein durch die im Vergleich zu S|1 stärkere Reduktion von on verursacht, sondern gleichfalls dadurch, daß diese Reduktion auch im Energiebereich hoher Neutronenintensität im Spektrum liegt. Wie Abb.47 zeigt, bewirkt die Erniedrigung des totalen inelastischen Querschnitts oberhalb 2 MeV, daß die Spektralverhältnisse in diesem Energiebereich um entsprechende Beträge oberhalb 1 bleiben. Im übrigen zeigen die Spektralverhältnisse ein qualitativ ähnliches Verhalten wie bei SI1. Insbesondere gilt auch, daß die spektralen Änderungen in vorderen Positionen etwas stärker ausgeprägt, dafür jedoch mehr auf den Bereich der Querschnittsänderung beschränkt sind als an Orten weit im Innern des Blocks.

Der Querschnittsverlauf S|3 (Abb.46) wurde gewählt, um herauszufinden, wie stark der Einfluß des totalen inelastischen Streuquerschnitts auf die Spektren noch im Energiebereich unterhalb 200 keV ist und welche Auswirkungen insbesondere die neueren Meßwerte von Barnard et al.¹¹¹ haben, auf denen der Querschnitt S|3 zwischen 100 und 300 keV basiert. Unterhalb 100 keV wurden diese Meßdaten nach Null extrapoliert. Es tritt nicht nur im Energieintervall der Querschnittsänderung ein starkes Neutronendefizit, sondern auch im Energiebereich darunter ein hoher Neutronenüberschuß auf. Dies ist wiederum zu verstehen durch das Zusammenspiel von σ_n , und σ_c sowie der Verteilung der Neutronenintensität im Spektrum. Die Querschnittsänderung liegt im Gebiet maximaler Intensität im Spektrum und in einem Energiebereich, wo der Einfangquerschnitt bereits beträchtliche Werte erreicht hat. Wird der totale inelastische Querschnitt in diesem Bereich erhöht, so benötigen die Neutronen im Mittel weniger Stöße zum Verlassen des Energieintervalls. Die Zahl der durch Einfangprozesse verlorengegangenen Neutronen wird dadurch erniedrigt.

Neben dem Einfluß des totalen inelastischen Streuquerschnitts auf die Spektren wurde auch der Einfluß der Streumatrix untersucht. Dazu wurden im Energiebereich der aufgelösten Niveaus und im Kontinuumsbereich je zwei Änderungen der Streumatrix betrachtet. Da der totale inelastische Streuguerschnitt bis etwa 700 keV nahezu ausschließlich von den Anregungsquerschnitten des 44.7 keV- und des 148 keV-Niveaus gebildet wird, wurde zunächst die relative Bedeutung dieser beiden Querschnitte geändert. Dazu wurde der Anregungsquerschnitt des 148 keV-Niveaus im gesamten Energiebereich halbiert und die eine Hälfte dem 44.7 keV-Niveau hinzuaddiert, so daß der totale inelastische Streuquerschnitt konstant blieb. Die dadurch verursachten spektralen Änderungen sind in der unteren Hälfte von Abb.48 dargestellt und mit IN1 bezeichnet. Da die betrachtete Streumatrixänderung bewirkt, daß die mittlere Anzahl der Stöße, die zur Überbrückung des Energieintervalls notwendig sind, anwächst, wird in ähnlicher Weise wie beim totalen inelastischen Ouerschnitt die Neutronenintensität im Bereich der Matrixänderung erhöht und im darunterliegenden Energiebereich erniedrigt. Die Beträge der spektralen Änderungen sind jedoch gering und überschreiten bei allen Energien keine 10%. Oberhalb 1 MeV sind die spektralen Veränderungen noch geringer, da in diesem Energiegebiet beide Anregungsquerschnitte in ihrer Wirkung auf das Spektrum als nahezu äquivalent angesehen werden können. Entsprechend den geringen spektralen Änderungen in allen Uranblockpositionen ist auch das Verhältnis der Spektrenverhältnisse für die beiden in Abb.48 dargestellten Positionen nahezu konstant.

Die zweite Änderung der inelastischen Streumatrix im Bereich diskreter Niveaus (IN2) wurde mit der Überlegung durchgeführt,



Abb.48 Verhältnisse von theoretischen Spektren, berechnet mit veränderten und unveränderten KEDAK-Streumatrizen; die Spektren wurden zwischen 10 keV und 10 MeV normiert.

daß alle Anregungsquerschnitte der oberhalb 1 MeV in dichter Folge auftretenden Energieniveaus qualitativ den gleichen Einfluß auf die Spektren ausüben. Relative Verschiebungen der Werte dieser Niveauquerschnitte werden bei Konstanthaltung ihrer Summe nur zu geringen spektralen Änderungen führen. Größere Effekte kann man nur erwarten, wenn einer oder mehrere der Anregungsquerschnitte der unteren Niveaus relativ zu einem 1 MeV-Niveau-Querschnitt erhöht oder erniedrigt werden. Dies wurde untersucht, indem der Querschnitt des 1.076 MeV-Niveaus, der im Energieintervall zwischen 1 und 2 MeV mit 10% des totalen inelastischen Querschnitts die höchsten Werte erreicht, willkürlich gleich Null gesetzt und seine Werte dem Anregungsquerschnitt des 44.7 keV-Niveaus hinzuaddiert wurden. Dies führt zu einer Erhöhung des Spektrums von maximal 18% in Position 8 und 12% in Position 28. Die Spektrumsänderung bleibt jedoch an beiden Orten auf den Energiebereich zwischen 1 und 2 MeV beschränkt (IN2 in Abh48). Der in Gleichung (29) verwendete Parameter y für die Berechnung der Energieverteilung der inelastisch gestreuten Neutronen im Kontinuumsbereich hat auf GRUBA den Wert O.16 MeV⁻¹. Führt man den von Pitterle⁹³ verwendeten Wert 0.099 MeV⁻¹ ein, der auf einer Anpassung der theoretischen Verteilung an die Messungen von Batchelor et al.¹¹⁴ beruht, so erhält man eine flach verteilte Erhöhung der Neutronenintensität zwischen 0.5 und 2.5 MeV mit einem breiten Maximum von etwa 10% bei 1.6 MeV (Abb.48). Eine weitere Erniedrigung von y auf den Wert 0.0685 führt zu einer qualitativ ähnlichen Veränderung der Spektren, die im Maximum etwa 20% erreicht.

Welche Auswirkungen die durchgeführten Querschnittsänderungen auf die Ratenverhältnisse haben, ist aus Abb.49 erkennbar. Das Verhältnis $\sigma_f(U-235)/\sigma_f(U-238)$ zeigt eine außerordentlich starke Abhängigkeit von den inelastischen Streuquerschnitten. Man erhält beim Übergang von den KEDAK-Daten zu S|2 eine Reduktion der Werte um nahezu 70%. Dies hat seinen Grund darin, daß das Spektrum oberhalb der Spaltschwelle von ²³⁸U durch die Änderung S|2 stark erhöht und im gesamten Energiebereich darunter zugleich merklich erniedrigt wird (vgl. Abb.47). Demgegenüber



Abb.49 Vergleich von berechneten und gemessenen U-Einfang- und Spaltratenverhältnissen

verursacht die Einführung des reduzierten Einfangquerschnitts Scapt 1 eine nur geringfügige Erhöhung des Spaltratenverhältnisses. Die Spektralindices $\sigma_{\rm C}(U-238)/\sigma_{\rm f}(U-235)$ zeigen eine relativ geringe Abhängigkeit von den Querschnittsänderungen. Dies liegt an der verhältnismäßig großen Ähnlichkeit im Verlauf des Einfangquerschnitts von ²³⁸U und des Spaltquerschnitts von ²³⁵U. Die größte Reduktion des Einfang- zu Spaltratenverhältnisses wird von allen untersuchten Querschnittsvariationen durch Scapt 1 mit 5% verursacht.

Zusammenfassend kann man sagen, daß die Uranblockspektren außerordentlich empfindlich gegen Änderungen des Einfang- und des inelastischen Streuquerschnitts von ²³⁸U sind, während alle anderen Kerndaten die Spektren nur schwach beeinflussen. Oberhalb 800 keV bis etwa 4 MeV bestimmt allein der inelastische Streuquerschnitt den Verlauf der Spektren, jedoch sind sowohl Änderungen des totalen inelastischen Streuquerschnitts als auch der inelastischen Streumatrix zu betrachten, obwohl Matrixänderungen einen etwas geringeren Einfluß auf die Spektren haben. Gewisse Schlüsse lassen sich sicher auch aus der Form der Spektrenverhältnisse sowie dem Vergleich dieser Verhältnisse an vorderen Positionen und an Orten weit im Innern des Uranblocks ziehen. Im Energiebereich unterhalb 500 keV konkurrieren Änderungen des Einfang- und des inelastischen Streuquerschnitts als Erklärungsmöglichkeiten für Unterschiede zwischen gemessenen und berechneten Spektren. Wenn man jedoch bedenkt, welch drastische Änderung der inelastische Streuquerschnitt S|3 darstellt und welch, verglichen damit, geringe Änderung Scapt 1 bedeutet, so erkennt man, daß unterhalb 100 keV die Spektren empfindlicher gegen Änderungen des Einfangquerschnitts sind. Auch in diesem Energiebereich lassen sich Schlüsse aus der Form der Spektrenverhältnisse ziehen, denn der in Abb.47 mit S|3 bezeichnete Verlauf ist charakteristisch für alle Änderungen des totalen inelastischen Streuquerschnitts in diesem Energiebereich.
7) Gemessene Spektren an verschiedenen Orten auf der Uranblockachse; Vergleich zwischen ³He und Protonenrückstoßspektren

Die Neutronenspektren wurden an verschiedenen Orten auf der Uranblockachse mit den in Teil I beschriebenen ³He-Halbleitersandwichspektrometern sowie mit kugelförmigen Protonenrückstoßzählern gemessen.*) Messungen mit den ³He-Halbleitersandwichspektrometern wurden an 8 bis 28 Inch von der Quelle entfernten Positionen in 4 Inch-Abständen durchgeführt. Der äußere Durchmesser der zylindrischen Spektrometer betrug 40 mm, ihre Höhe 25 mm. Die Ausdehnung des empfindlichen Gasvolumens lag zwischen 6 und 10 mm. Zur Aufnahme der Spektrometer existierten spezielle Uranblöcke mit zylindrischen Bohrungen, die dem äußeren Durchmesser der Spektrometer angepaßt waren. Weitere Zwischenstücke mit zylindrischen Kanälen ermöglichten einen stufenförmigen Übergang vom Spektrometerdurchmesser zum Durchmesser der Kabeldurchführungen (Abb.50 unten). Die Energieeichung wurde mit den in Abschnitt I3e beschriebenen Methoden durchgeführt, und zur Bestimmung des Nullpunkts der Neutronenenergie wurde vor und nach jeder Spektrumsmessung die Lage des thermischen Neutronenpeaks ermittelt. Dabei wurde deutlich, daß das Maximum des Impulshöhenspektrums jeweils 40-60 keV oberhalb des thermischen Peaks lag. Nach der Entfaltung mit dem in ¹⁶⁾ beschriebenen Programm, die jedoch nur zu geringen Korrekturen führte, wurde das gemessene Impulshöhenspektrum mit dem ³He(n,p)t-Querschnitt von Als-Nielsen³⁹ und der geometrischen Empfindlichkeit, die unter Berücksichtigung der Anisotropie des Neutronenflusses für jede Meßposition neu berechnet wurde (s. Teil I, Abschn. 4), ausgewertet. Die durch die unterschiedliche Anisotropie des Neutronenflusses an den einzelnen Meßpositionen verursachten Unterschiede der geometrischen Empfindlichkeiten waren jedoch ebenfalls gering. Zur Überprüfung der Reproduzierbarkeit wurden einzelne Messungen zum Teil mit ³He-Spektrometern anderer Abmessungen wiederholt. Neutronenspektrumsmessung und Untergrundmessung wurden über Spaltkammermonitore aufeinander bezogen, ebenso Messungen an verschiedenen Orten und mit unterschiedlichen Neutronenquellstärken.

^{*)} Die Messungen mit den kugelförmigen Protonenrückstoßzählern wurden dankenswerterweise von Herrn Dr.G.Fieg und Dr.H.Werle durchgeführt.



<u>Abb.50</u> Vergleich von gemessenen Spektren an verschiedenen Orten auf der Uranblockachse

Die kugelförmigen Protonenrückstoßzähler¹¹⁸ wurden in äquivalenter Weise wie die ³He-Spektrometer in den Meßkanal eingebaut. Sie hatten einen Durchmesser von 3.94 cm und enthielten Wasserstoff-Methan-Füllungen verschiedener Drucke. Unterschiedliche Zähler wurden über die absolute Anzahl der in ihnen enthaltenen Wasserstoffatome aufeinander normiert. An einigen Meßpositionen wurde unterhalb 50 keV Neutronenenergie die von Bennett entwickelte γ -n-Diskriminierungsmethode¹¹⁹ angewendet. Zur Energieeichung enthielten die Zählrohre geringe Mengen ³He.

Die Protonenrückstoßverteilungen wurden mit dem von Benjamin¹²⁰ beschriebenen Programm entfaltet, wobei analytisch berechnete Antwortfunktionen verwendet wurden. Protonenrückstoßmessungen konnten in 16 bis 36 Inch Entfernung von der Quellfläche durchgeführt werden.

Der meßbare Energiebereich der ³He-Spektrometer lag zwischen 100 keV und ungefähr 5 MeV, derjenige der Kugelzähler zwischen 10 keV und 1.4 MeV. Der große Überlappungsbereich von 100 keV bis 1.4 MeV zwischen beiden Meßmethoden ermöglichte eine gute Normierung der Spektren aufeinander. Abb.50 zeigt sämtliche auf der Uranblockachse gemessenen ³He- und Protonenrückstoßspektren. Die Zahlen der einzelnen Meßpositionen geben die Entfernung von der Flächenquelle in Inch an. Man erkennt eine deutliche Verschiebung des spektralen Maximums zu niedrigeren Energien mit wachsender Entfernung von der Quelle. Die gute Reproduzierbarkeit der Messungen zeigen die Spektren der Positionen 16-24, wo sowohl mit den ³He-Spektrometern als auch mit den Protonenrückstoßzählern Wiederholungsmessungen durchgeführt wurden. Die ³He-Spektren in diesen Positionen wurden mit zwei unterschiedlichen Spektrometern und in verschiedenen Meßanordnungen bestimmt. Das eine Spektrometer enthielt 300 mm^2 große Detektoren, die 8 mm voneinander getrennt waren, und im anderen wurden zwei 450 mm² große Detektoren mit 10 mm Zwischenraum benutzt. Dieser unterschiedliche Aufbau führt einerseits zu unterschiedlichen geometrischen Empfindlichkeiten, zum anderen wurde das 450 mm² Spektrometer nicht mit Hilfe der Spe-

zialblöcke in den Meßkanal eingebaut, sondern mit Hilfe eines 66 mm hohen Säulentempels mit quadratischer Grundfläche. Der dadurch vergrößerte Hohlraum im Meßkanal führt zumindest in den hinteren Meßpositionen 20 und 24 nicht zu merklichen Störungen. Die etwas größeren Differenzen der Spektren in Position 16 sind vermutlich hauptsächlich auf die, infolge des unterschiedlichen Einbaus der Spektrometer, nicht völlig identischen Meßpositionen zurückzuführen. Insbesondere in den hinteren Meßpositionen, wo die im folgenden diskutierten systematischen Fehler sowohl für die ³He- als auch für die Protonenrückstoßspektrometer klein sind, ist die Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen der beiden Meßtechniken ausgezeichnet und liegt z.B. an Position 28 bei ±5%.

Durch die Einführung eines Spektrometers wird das Neutronenspektrum des ungestörten Uranblocks verändert. Diese Änderungen werden einerseits durch Streamingeffekte in den zur Aufnahme des Spektrometers und zur Durchführung der Impulskabel notwendigen Hohlräumen und Kanälen verursacht, andererseits durch Streueffekte an Materialien, aus denen Spektrometer und Leitungen aufgebaut sind. Die Störungen des Spektrums wachsen mit der Größe der Hohlräume und Kanäle bzw. mit den Materialmengen an. Beides muß daher so klein wie möglich gehalten werden. Zur Untersuchung der Hohlraumeffekte wurden neben den bereits erwähnten Messungen in 66 mm großen Hohlräumen noch Messungen in doppelt so großen Hohlräumen durchgeführt. Ein Vergleich der ³He-Impulshöhenspektren ergab signifikante Unterschiede erst unterhalb 200 keV, wo die Messung in dem größeren Hohlraum eine etwa 10% höhere Intensität lieferte. Eine eindeutige Zurückführung dieses Unterschieds auf Streamingeffekte ist jedoch nicht möglich, da das Impulshöhenspektrum in diesem Energiebereich stark anwächst und eine geringe Verschiebung des Energienullpunkts bereits zu großen Unterschieden in den Spektralverhältnissen führen kann. Die Störeffekte wurden daher auch rechnerisch untersucht. Durch eine Kombination von ein- und zweidimensionalen Sn-Rechnungen lassen sich die Beiträge der Streamingund der Streueffekte in den Spektrometerwänden näherungsweise trennen. Der Vergleich von eindimensionalen, in Kugelgeometrie

durchgeführten Sn-Rechnungen, mit und ohne Spektrometer im Zentrum der Kugel, ergab eine obere Abschätzung für die durch Streuung im Spektrometer verursachten Veränderungen des ungestörten Spektrums. Die Einführung des ³He-Spektrometers, das im wesentlichen aus Eisen und Aluminium besteht, führt im Gebiet großer Resonanzen im Wirkungsquerschnitt dieser Elemente zu starken Differenzen, die in den Maxima der Resonanzen bis zu 20% erreichen können. An einer Stelle, bei 27 keV, erreichen sie sogar 50%. Über ABN-Gruppen gemittelt sind die Unterschiede jedoch erheblich geringer und betragen im Anwendungsgebiet des untersuchten Spektrometers oberhalb 100 keV weniger als ±3% und im gesamten Energiebereich bis 10 keV ±5%. Da die Kugelzähler jedoch dünnere Eisenwände und überhaupt kein Aluminium enthalten, sind die Effekte im gesamten Meßbereich dieser Spektrometer noch geringer. Die gemeinsam mit beiden Spektrometern gefundene Struktur in den Spektren der Positionen 16-36 bei 130 bzw. 190 keV ist auf die in diesem Energiebereich vorhandenen Eisenresonanzen zurückzuführen. Da die energetische Auflösung des Protonenrückstoßspektrometers in diesem Energiebereich etwas besser ist, sind trotz der nur halb so dicken Wandstärke (0.51 mm) dieses Spektrometers die Strukturen im Verlauf der Spektren etwa gleich groß. Man erkennt auch in den Protonenrückstoßmessungen bei 26 keV einen vorübergehend nahezu konstanten Verlauf des Spektrums, der durch die starke Eisenresonanz bei dieser Energie verursacht wird. Sowohl die Streamingeffekte als auch die Streueffekte, wenngleich mit wesentlich geringerer energetischer Auflösung, liefert ein Vergleich der berechneten Spektren eines ungestörten und eines durch den Spektrometereinbau veränderten Uranzylinders. Die zweidimensionalen 26-Gruppen-S,-Rechnungen ergaben nur zwischen 21.5 und 46.5 keV deutlich geringere Werte für das Verhältnis der Spektren des ungestörten und des gestörten Uranblocks als die eindimensionalen Vielgruppenrechnungen. Man kann daher vermuten, daß dies mehr auf die nicht richtig gewichteten Streuquerschnitte der zweidimensionalen 26-Gruppenrechnung als auf Streamingeffekte zurückzuführen ist, die sonst seltsamerweise allein in dieser Gruppe wirksam sein müßten.

Bei dem soeben diskutierten Vergleich der Spektren des ungestörten und des gestörten Blocks wurde als Vergleichsort das Zentrum des Spektrometers gewählt. Da das Spektrometer jedoch eine endliche Ausdehnung besitzt, ändert sich sowohl die Intensität als auch die spektrale Zusammensetzung des Flusses über den Ort des Spektrometers. Man mißt daher ein mit der ortsabhängigen Empfindlichkeit des Spektrometers gewichtetes und über die Ausdehnung des empfindlichen Volumens des Spektrometers integriertes Spektrum, das mit den berechneten Spektren, die Mittelwerte in den betreffenden Ortsintervallen darstellen, auch dann nicht übereinzustimmen braucht, wenn die Mittelungsintervalle der Ausdehnung des Spektrometervolumens entsprechen. Man wird jedoch zumindest dann gute Übereinstimmung von gemessenen und berechneten Spektren erwarten, wenn die Änderungen in der Zusammensetzung des Spektrums über den Ort des Spektrometers klein sind. Bei Normierung auf gleichen integralen Fluß oberhalb 1 MeV beträgt der Unterschied der Spektren bei Pos. 8 am Beginn und am Ende der empfindlichen Zone des ³He-Spektrometers im meßbaren Energiebereich maximal 7%. Für das Protonenrückstoßspektrometer würde er an diesem Meßort jedoch bereits 35% betragen, wodurch eine Interpretation der dort gemessenen Protonenrückstoßspektren sehr schwierig wäre. Protonenrückstoßmessungen konnten daher erst ab Position 16 durchgeführt werden, wo der Unterschied der betreffenden Spektren 10% nicht überschritt. Es sei darauf hingewiesen, daß der tatsächliche Unterschied des gemessenen und des für den Vergleich verwendeten berechneten Spektrums im Zentrum des empfindlichen Volumens der Spektrometer natürlich erheblich geringer ist.

8) Messung von ²³⁵U-Spaltraten und ²³⁸U-Spalt- und Einfangraten auf der Blockachse und in einem Querkanal; örtliche Relaxationslängen und Ratenverhältnisse

Zur Ergänzung der Spektrumsmessungen wurden auch die ²³⁵Uund ²³⁸U-Spaltraten- sowie die ²³⁸U-Einfangraten mit Parallelplattenspaltkammern^{*} und aktivierten Uranfolien verschiedener Anreicherungsgrade bestimmt. Die zylindrischen Spaltkammern hatten einen Durchmesser von 2.54 cm und eine Höhe von 0.5 cm und besaßen 0.1 mm starke Aluminiumwände. Sie enthielten sehr genau bestimmte Mengen von ²³⁵U und ²³⁸U, die auf 0.1 mm dicken Stahlfolien aufgebracht worden waren. Die Spannungsversorgung sowie die Zählgaszufuhr geschah im Bereich der Kammer mittels dünnwandiger koaxialer Al-Rohre. Die Spaltkammern konnten ähnlich wie die Spektrometer in die entsprechenden Bohrungen von speziellen Meßkanalfüllblöcken eingebaut werden. Aufgrund der für die Neutronenspektrometer durchgeführten Untersuchungen kann man schließen, daß die durch den Einbau der Kammern verursachten Störungen des Spektrums vernachlässigbar klein sind.

Die für Aktivierungsmessungen benutzten Uranfolien hatten ebenfalls einen Durchmesser von 2.54 cm und eine Dicke von 0.1 mm. An jedem Meßort wurden zwei Folien, die 20% und 0.222% U-235 enthielten, benutzt. Die relativen Spaltraten wurden aus der integralen γ -Zählrate oberhalb 660 keV berechnet, die mit 2 NaJ-Detektoren in einer von Blank et al.¹²¹ beschriebenen Anlage gemessen wurde. Gleichzeitig wurde die 107 keV- γ -100 keV-Röntgenstrahlungs-Koinzidenzzählrate der abgereicherten Folien zur Bestimmung der ²³⁸U-Einfangrate gemessen. Das Hauptproblem dieser Messungen ist die Stabilisierung der zählratenabhängigen Verstärkung der Photoelektronenvervielfacher. Bei den hier durchgeführten Messungen wurde der γ -x-ray Peak der einzelnen Detektoren unter Verwendung der Koinzidenzbedingung für die Stabilisierungszwecke verwendet.

Zur Bestimmung der absoluten Spaltraten wurden Uranfolienpaare zugleich am Ort der Spaltkammer und an einigen davor gelegenen Meßpositionen bestrahlt. Die absoluten Einfangraten wurden mit

*) Die benutzten Spaltkammern wurden von Herrn Dr.D.Kuhn hergestellt.

Hilfe eines ²⁴³Am-Präparates ermittelt, das zuvor durch Vergleich mit im thermischen Neutronenfluß aktivierten Uranfolien geeicht worden war.

Sämtliche Einfang- und Spaltratenmessungen im Axialkanal sind in Abb.51 zusammengestellt. Im allgemeinen ist die Übereinstimmung der mit verschiedenen Methoden und in verschiedenen Messungen gewonnenen Ergebnisse gut. Größere Abweichungen ergeben sich für die ²³⁸U-Spaltratenmessung mit Folien mit wachsender Entfernung von der Quelle. Dies hat seinen Grund in der starken Zunahme der statistischen Fehler. Folienmessungen zur ²³⁸U-Spaltratenbestimmung konnten daher nur bis etwa 45 cm ins Innere des Uranblocks durchgeführt werden. Andie axialen Ratenverteilungen wurden stückweise, für Bereiche von 10 bis 20 cm, Exponentialfunktionen exp(-z/L) zur Bestimmung örtlicher Relaxationslängen L angepaßt. Die Ergebnisse zeigt Abb.52. Alle drei Ratentraversen streben zwischen 50 und 70 cm einem Wert von etwa 8.5 ± 0.15 cm zu. Es wird aber auch am Verhalten der ²³⁸U-Relaxationslänge deutlich, daß der Gleichgewichtsbereich nicht erreicht wurde. Zum Blockende hin wächst die 235U-Relaxationslänge infolge von Rückstreueffekten an der hinteren Abschirmung bereits wieder an. Der Wert, den man mit Hilfe des aus der radialen Traverse bestimmten Bucklings für die Relaxationslänge des abgereicherten Urans in 50-70 cm Entfernung von der Quelle erhält, ist daher nur für einen Vergleich mit den älteren Natururanblockexperimenten von Interesse. Die Buckling-korrigierte Relaxationslänge bekommt man aus⁸² $1/L_B^2 = 1/L^2 - (B_x^2 + B_y^2)$, wobei B_x und B_y die gemessenen Bucklings in transversaler Richtung sind. Die Anpassung einer Cosinusverteilung an die inneren Messpunkte der gleichfalls in Abb.52 dargestellten gemessenen Traverse im Querkanal des Uranblocks ergibt $B = 0.311 \ 10^{-1} \ cm^{-1} \pm 3$ %. Unter der Annahme, daß die axiale Ortsabhängigkeit von B durch die Kurven in Abb.37 beschrieben werden kann, berechnet man für B einen im Intervall 50-70 cm gültigen Wert von 0.274 · 10⁻¹ cm⁻¹. Mit diesem erhält man für die Buckling-korrigierte Relaxationslänge $L_B = 9.00$ cm. Das gemessene Einfang- zu Spaltratenverhältnis $\sigma_{C}(U-238)/\sigma_{f}(U-235)$ ist in Abb.49 oben dar-







Abb.52 Reaktionsratentraverse im Querkanal und örtliche Relaxationslängen im Axialkanal

gestellt. Es erreicht im Innern des Blocks einen Wert von annähernd 0.143. Der Meßfehler dieses Verhältnisses liegt bei etwa 5%.

Das mit Uranfolien und mit Spaltkammern gemessene Spaltratenverhältnis $\sigma_f(U-235)/\sigma_f(U-238)$ stimmt im gesamten gemeinsamen Meßbereich gut überein. Man kann daher vermuten, daß auch die im Innern des Uranblocks nur mit Kammern gemessenen Werte zuverlässig sind und keine systematischen Fehler, die mit dem Einbau der Kammern zusammenhängen, enthalten. Wie man aus Abb.49 erkennt, nähert sich das Verhältnis dem Wert $410^{\pm}12$.

9) Vergleich von gemessenen und gerechneten Spektren und Spektrenverhältnissen sowie Raten und Ratenverhältnissen

Die Verhältnisse der theoretischen mit den KEDAK-Daten berechneten und der experimentellen Spektren wurden für sämtliche Meßpositionen in Abb.53 zusammengestellt. Große Diskrepanzen zwischen den berechneten und gemessenen Spektren treten zwischen 800 keV und 2.5 MeV sowie zwischen 10 keV und 60 keV auf. Die Diskrepanzen bei 1.6 MeV sind in den vorderen Meßpositionen etwas stärker ausgeprägt, und daher zeigt ein Vergleich der Spektralverhältnisse der Positionen 8 und 28 eine Erhebung von etwa 20% bei dieser Energie. Zwischen 100 keV und 800 keV erhält man einen relativ flachen Verlauf der Spektralverhältnisse, jedoch mit Strukturen, die bei allen ³He- und etwas schwächer ausgeprägt auch bei einigen Protonenrückstoßmessungen präsent sind. Unterhalb 200 keV sind diese Strukturen in den Spektralverhältnissen der ³He-Messungen sicher auf systematische, zum Teil in Abschnitt 7 diskutierte Fehler der Meßmethode zurückzuführen. Oberhalb dieser Energie, z.B. bei 800 keV können die erwähnten Strukturen jedoch durchaus real sein.

Unterhalb 80 keV fällt das Verhältnis der experimentellen und theoretischen Spektren sehr steil auf einen minimalen Wert



Abb.53 Verhältnisse von experimentellen und theoretischen, mit KEDAK-Querschnitten berechneten Spektren an verschiedenen Orten auf der Uranblockachse; die Spektren wurden zwischen 100 keV und 1.4 MeV normiert.

ab und steigt unterhalb 30 keV erneut auf Werte über 1 an. Bei der Interpretation der Abb.53 sollte man beachten, daß die ³He-Messungen unterhalb etwa 200 keV und oberhalb etwa 4 MeV, wo die statistischen Fehler stark anwachsen, weniger zuverlässig sind. Das gleiche gilt für die Protonenrückstoßmessungen oberhalb 1.2 MeV, wo Wandeffekte stark zunehmen. Weiterhin sollte man im Gedächtnis behalten, daß die in Abschnitt 7 diskutierten systematischen Fehler mit größerer Wahrscheinlichkeit in vorderen Meßpositionen auftreten. Daher muß eine Auswertung der Spektrumsmessungen etwas mehr Gewicht auf Messungen weit im Innern des Blocks legen. Ein Vergleich der berechneten und gemessenen Ratenverhältnisse (in Abb.49) zeigt, daß die experimentellen Werte für $\sigma_{\rm f}\,({\rm U}{-}235)\,/\sigma_{\rm f}\,({\rm U}{-}238)$ etwa 20% unter den mit den KEDAK-Daten erhaltenen Werten liegen, während das mit der y-x-Koinzidenzmethode gemessene Einfang- zu Spaltratenverhältnis $\sigma_{\rm C}(U-238)/\sigma_{\rm f}(U-235)$ die berechneten Werte um nicht mehr als 9% unterschreitet.

10) Deduktion eines empfohlenen ²³⁸U-Querschnittsatzes

Aus den in Abb.46 und 47 dargestellten Empfindlichkeitsuntersuchungen muß man schließen, daß die großen Diskrepanzen zwischen theoretischen und experimentellen Spektren bei 1.6 MeV hauptsächlich auf den totalen inelastischen Streuquerschnitt von ²³⁸U zurückzuführen sind, der im Energiebereich zwischen 0.8 und 2 MeV wesentlich zu hoch ist. Ein Vergleich der Abbildungen 47 und 53 zeigt jedoch auch, daß die Reduktion SI2 insbesondere oberhalb 2 MeV, aber auch unterhalb 1 MeV zu groß ist, während die mit S|1 durchgeführte Verkleinerung des Querschnitts zu gering ist und nicht ausreicht, um die Differenzen zwischen berechneten und gemessenen Spektren zu erklären. Stellen wir die in Abb.47, 48 und 53 dargestellten Spektralverhältnisse einander gegenüber, so wird deutlich, daß es schwierig wäre, die großen Diskrepanzen zwischen experimentellen und theoretischen Ergebnissen allein mit Änderungen der inelastischen Streumatrix zu erklären. Dagegen spricht unter anderem auch die Form der Spektralverhältnisse mit deutlich ausgeprägten Strukturen, die dem im Verhältnis S|2/KEDAK in Abb.47 erkennbaren welligen Verlauf entsprechen, der das Verhalten des totalen inelastischen KEDAK-Querschnitts in diesem Energiebereich widerspiegelt. Dennoch kann man eine kombinierte Änderung des totalen inelastischen Streuquerschnitts und der Streumatrix nicht völlig als Erklärungsmöglichkeit für die Differenzen ausschließen. In diesem Zusammenhang sollte man darauf hinweisen, daß der abrupte Übergang auf KEDAK vom Bereich diskreter Niveaus zum statistischen Bereich bei 2 MeV physikalisch ungerechtfertigt ist und sicher einen gewissen Einfluß auf die Spektren hat. Auch scheint es in Anbetracht neuerer theoretischer Untersuchungen^{107,112} nicht sinnvoll zu sein, den inelastischen Anregungsguerschnitt des 45 keV-Niveaus bereits bei 1.5 MeV - wie auf KEDAK - Null zu setzen.

Führt man jedoch die Diskrepanzen zwischen experimentellen und theoretischen Spektren im Energiebereich von 400 keV bis 2 MeV allein auf den totalen inelastischen Streuquerschnitt von 238 U zurück, so muß letzterer in diesem Energiegebiet erheblich reduziert werden. Zwischen 400 keV und 2 MeV muß man daher den mit S|E bezeichneten totalen inelastischen Streuquerschnitt von Abb.46 einführen. Die Einführung dieses Querschnitts bewirkt einerseits eine Beseitigung der Diskrepanzen zwischen experimentellen und theoretischen Spektren in diesem Energiegebiet, andererseits, in ähnlicher Weise wie S|2 in Abb.47, ein stetiges Absinken des Spektralverhältnisses unterhalb 400 keV. Letzteres erleichtert zwar die Erklärung der Unterschiede zwischen Messung und Rechnung zwischen 20 und 60 keV, muß jedoch oberhalb 80 keV abgeflacht werden, um den nahezu konstanten Verlauf der Spektralverhältnisse von Abb.53 zu reproduzieren. Dies wird erreicht durch eine weitere Reduktion des totalen inelastischen Streuquerschnitts zwischen 70 keV und 300 keV. Zusätzlich wurde, in Übereinstimmung mit neueren differentiellen Messungen, der Einfangquerschnitt in diesem Energieintervall erniedrigt. Alternativ hätte man den Anregungsquerschnitt des 45 keV-Niveaus relativ zum Anregungsquerschnitt

des 148 keV-Niveaus anheben können, aber wie in Abschnitt 6 diskutiert, wären sehr drastische Änderungen notwendig, um merkliche spektrale Effekte zu erhalten.

Durch die bisher diskutierten Querschnittsänderungen wird bereits ein großer Teil der Diskrepanzen zwischen 30 keV und 60 keV beseitigt. Um jedoch eine vollständige Übereinstimmung zwischen theoretischen und experimentellen Spektren zu erreichen, muß man den Einfangquerschnitt zwischen 35 keV und 70 keV und den totalen inelastischen Querschnitt unterhalb 70 keV anheben. Beides führt zu der gewünschten Reduktion des Spektrums in diesem Energiebereich, aber der zweite Schritt erhöht zugleich das Spektrum unterhalb etwa 25 keV, was den raschen Anstieg des Spektralverhältnisses unterhalb dieser Energie erklären hilft. Der größte Teil des Neutronenüberschusses unterhalb 25 keV kann jedoch nur durch eine starke Reduktion des Einfangquerschnitts unterhalb 30 keV erklärt werden. Der durch das Verhalten der Spektralverhältnisse zwingend nahegelegte Verlauf des ²³⁸U-Einfangquerschnitts in diesem Bereich befindet sich in guter Übereinstimmung mit den neuesten Messungen von Fricke et al.¹⁰⁶. Auf diese Weise wurden empfohlene ²³⁸U-Einfang- und totale inelastische Streuquerschnitte abgeleitet (Scapte in Abb.44 und SIE in Abb.46), die in der Lage sind, die gemessenen Spektren an allen Positionen auf der Blockachse innerhalb der experimentellen Fehler von ±10% wiederzugeben. Die in Abb.54 verbleibenden Unterschiede liegen zwar innerhalb der experimentellen Fehler, da sie in einigen Energiebereichen jedoch bei allen Messungen auftreten, könnten einzelne der Unterschiede durchaus reell sein. Dies trifft jedoch sicher nicht auf die bei den ³He-Messungen verbleibenden Differenzen unterhalb 200 keV und oberhalb 4 MeV 211.

Wie man aus der Abb.49 erkennt, führen die empfohlenen Wirkungsquerschnitte auch zu einer guten Übereinstimmung zwischen theoretischen und experimentellen Spektralindices.



Abb.54 Verhältnisse von experimentellen und theoretischen, mit den abgeleiteten ²³⁸U-Querschnitten berechneten Spektren; die Spektren wurden zwischen 100 keV und 1.4 MeV normiert.

Eine über die vorgeschlagene Reduktion hinausgehende Verkleinerung des inelastischen Streuquerschnitts oberhalb 2 MeV würde insbesondere das ²³⁵U- zu ²³⁸U-Spaltratenverhältnis verringern, was mit den Meßergebnissen nicht vereinbar wäre.

Da die Schlußfolgerungen, die zu den abgeleiteten Wirkungsquerschnitten führten, nicht immer eindeutig sind, müssen wir den empfohlenen Werten gewisse Unsicherheiten zuordnen, die andere vernünftige, jedoch meist weniger wahrscheinliche Erklärungsmöglichkeiten berücksichtigen. Diese Unsicherheiten resultieren im Falle des totalen inelastischen Streuquerschnitts aus der Vernachlässigung der spektralen Änderungen, die durch Matrixänderungen hervorgerufen werden können. Aus der in Abb.48 dargestellten Empfindlichkeit der Spektren gegen Streumatrixänderungen erhält man eine ungefähre Abschätzung für die von den Matrixen herrührende Unsicherheit. Wenn man sowohl die in Abschnitt 6 diskutierte Erhöhung des Anregungsquerschnitts des 45 keV-Niveaus oberhalb 1.5 MeV als auch die Reduktion von γ auf den Wert 0.099 als gerechtfertigt ansieht, so zwingt dies zu einer 20%igen Erhöhung der empfohlenen Werte des totalen inelastischen Streuquerschnitts bei 1.6 MeV. Wenn man annimmt, daß das Verhältnis zwischen den Anregungsquerschnitten des 45 keV- und des 148 keV-Niveaus zwischen 200 keV und 1 MeV um 50% zu klein ist, anstelle von 100%, wie in Abschnitt 6 zugrunde gelegt wurde, so führt dies zu einer Erhöhung der empfohlenen Werte des totalen inelastischen Streuquerschnitts von nicht mehr als 5%.

Oberhalb 80 keV wurde der empfohlene Einfangquerschnitt neueren Messungen und Auswertungen angepaßt und streng genommen nicht aus den Messungen abgeleitet, obwohl seine Werte die experimentellen Ergebnisse unterstützen. Um den Verlauf der Spektren unterhalb 80 keV zu erklären, gibt es zwei nur teilweise konkurrierende Möglichkeiten: Eine weitere Erhöhung des totalen inelastischen Streuquerschnitts unterhalb 70 keV würde eine Extrapolation des Querschnitts nach Null bei 45 keV erschweren und außerdem nicht zu wesentlichen Änderungen bei 10 keV führen. Es scheint daher zwingend zu sein, den neueren differentiellen Messungen von Fricke et al.¹⁰⁶ auch in diesem Energiebereich zu folgen. Eine volle Ausschöpfung der Fehlergrenzen der differentiellen Messungen erfordert jedoch immer noch die beschriebene Erhöhung des totalen inelastischen Querschnitts, um eine völlig befriedigende Übereinstimmung zwischen Theorie u. Exp. zu erreichen. Deshalb sollte der angepaßte Einfangquerschnitt innerhalb der Fehlergrenzen des Experiments von ±10% zuverlässig sein.

11) Einige Anwendungen des abgeleiteten ²³⁸U-Querschnittsatzes

Der adjustierte ²³⁸U-Querschnittssatz wurde zur Neuberechnung einiger Ergebnisse der älteren zuverlässigen Natururanexponentialexperimente von Chezem⁷² und Campan et al.⁷³ verwendet. Chezem hat das Spaltratenverhältnis $\sigma_f(U-235)/\sigma_f(U-238)$ mit verschiedenen Meßtechniken – Folienaktivierung, Spaltkammern, radiochemisch – im Pseudogleichgewichtsbereich bestimmt. Seine Ergebnisse sind zusammen mit den Spaltkammermessungen von Campan et al. in Tabelle 4 den berechneten Werten gegenübergestellt.

Verhältnis	Experime	nt	Theorie		
	Chezem	Campan et al.	KEDAK	adjust.Querschn.	
$\frac{\sigma_{f}(U-235)}{\sigma_{f}(U-238)}$	238±6 Folien- aktiv.				
	240±12 Radio- chem.		293	251	
	243±15 Spaltk.1	230±10 Spaltk			
	241±13 " 2				

Tabelle 4 Vergleich von gemessenen und berechneten Spaltratenverhältnissen in Natururanblöcken

Während das Spaltratenverhältnis von KEDAK um 20% überschätzt wird, stimmt der mit dem adjustierten ²³⁸U-Querschnittssatz berechnete Wert innerhalb der Meßfehler mit den experimentellen Ergebnissen überein.

Der empfohlene ²³⁸U-Querschnitt wurde auch dazu benutzt, um die Spektren der schnellen Anordnungen SNEAK 8⁶⁶, SNEAK 6D und $\Sigma\Sigma^{68}$, für die Meßergebnisse existieren, neu zu berechnen. Die Spektren im Zentrum der k_{oo}-Testzone des Urancores SNEAK 8 und im Mittelpunkt der Natururankugelschale von $\Sigma\Sigma$ wurden bereits in den Abb.29 und 31 vorgestellt. Beide Anordnungen sollten relativ empfindlich gegen ²³⁸U-Querschnittsänderungen sein, während SNEAK 6D als Mock-up-Anordnung eines Natrium gekühlten Schnellen Brüters mit Plutoniumbrennstoff eine nur geringe Abhängigkeit der zentralen Spektren von den ²³⁸U-Kerndaten erwarten läßt.

In Abb.55 sind die Verhältnisse zwischen den berechneten und den gemessenen Spektren dargestellt. Man erkennt, daß bei Verwendung der adjustierten ²³⁸U-Querschnitte für alle drei Anordnungen eine verbesserte Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie erreicht wurde, aber der Grad der Verbesserung hängt natürlich von der Empfindlichkeit der Spektren gegen Änderungen der ²³⁸U-Kerndaten ab. Er ist, wie erwartet, für SNEAK 8 am größten und für SNEAK 6D am geringsten. In diesem Zusammenhang ist es wichtig, darauf hinzuweisen, daß die Anisotropie der Streuung im Zentrum von SNEAK 8 ohne Bedeutung ist und daß daher die Anisotropie der inelastischen Streuung sicher als Erklärungsmöglichkeit für die Diskrepanzen zwischen Experiment und Theorie ausfällt (vgl. die Diskussion in Abschnitt 4). Obwohl die Diskrepanzen zwischen Theorie und Experiment auch im Energieintervall von 30 keV bis 80 keV erheblich reduziert wurden, verbleibt dennoch eine Differenz, die nicht allein mit experimentellen Fehlern erklärt werden kann. Man kann daher vermuten, daß diese Diskrepanzen von Wirkungsquerschnitten anderer, ebenfalls in SNEAK 8 enthaltener Materialien wie ²³⁵U, Ni oder Fe herrühren. Auch die berechneten Spektralindices im Zentrum von SNEAK 8 zeigen bei Verwendung der empfohlenen ²³⁸U-Querschnitte eine wesentlich bessere Übereinstimmung mit dem Experiment. In Tabelle 5 werden die



Abb.55 Verhältnisse von experimentellen und theoretischen, mit KEDAK- und den adjustierten ²³⁸U-Querschnitten berechneten Spektren; die Spektren wurden zwischen 100 keV und 1.4 MeV normiert.

mit KEDAK, den adjustierten Querschnitten und dem KFKINR-Satz¹²² berechneten Ratenverhältnisse mit den Meßergebnissen verglichen.

	Exp. ¹²⁵	KEDAK	adj. Querschnitt	KFKINR
$\frac{\sigma_{f}(U-238)}{\sigma_{f}(U-235)}$	0.0224± 0.0006	0.0209	0.0218	0.0227
$\frac{\sigma_{c}(U-238)}{\sigma_{f}(U-235)}$	0.110	0.130	0.123	0.121

Tabelle 5 Spektralindices im Zentrum von SNEAK 8

Obgleich die Verbesserung der Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie auch für das Einfang- zu Spaltratenverhältnis erheblich ist, verbleibt dennoch eine Diskrepanz zwischen den mit Ge(Li)-Detektoren gemessenen Werten und den Rechnungen, die vielleicht auf die Eichung des benutzten ²⁴³Am-Präparats zurückzuführen ist. Letzteres war nicht identisch mit dem in dieser Arbeit verwendeten ²⁴³Am-Präparat.

Die Verwendung des adjustierten ²³⁸U-Querschnitts führt auch im Falle der 22-Anordnung zu einer wesentlich besseren Übereinstimmung zwischen theoretischen und experimentellen Spektren, insbesondere im Energiebereich zwischen 900 keV und 2 MeV. Wie in SNEAK 8, sind auch in der SS-Anordnung einige Strukturund Abschirmmaterialien (Al, B_AC) enthalten, die das Spektrum, insbesondere bei niedrigen Energien, wo elastische Streuung der dominierende Moderationsprozeß wird, stark beeinflussen. Die zentrale Zone von SNEAK 6D enthält zwar auch 13% 238 U, die Bedeutung der ²³⁸U-Querschnitte für die Ausbildung der Spektren im Zentrum der Anordnung ist jedoch gering. Obwohl die Abweichungen zwischen Theorie und Experiment auch bei Verwendung der KEDAK-Daten bereits klein sind, wird dennoch durch Einführung der empfohlenen ²³⁸U-Querschnitte eine um 2-5% bessere Übereinstimmung im gesamten gemessenen Energiebereich erzielt. Es sollte darauf hingewiesen werden, daß die Spektralverhältnisse große Oszillationen in der Nähe von Querschnittsresonanzen zeigen, insbesondere dann, wenn die experimentelle Auflösung schlechter ist als die Auflösung der Rechnung. Wie Abb.55 zeigt, stimmen die über größere Intervalle gemittelten Verhältnisse jedoch gut überein.

Der von Kiefhaber¹²² aus Kritikalitätsberechnungen verschiedener. schneller Nullenergieanlagen abgeleitete KFKINR-Satz führte für den Einfangquerschnitt und den totalen inelastischen Streuquerschnitt von ²³⁸U zu ähnlichen Ergebnissen wie die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen. Seine Resultate sind gleichfalls in den Abb.44 und 46 eingetragen. Der inelastische Streuquerschnitt des KFKINR-Satzes liegt zwischen 100 und 800 keV sowie zwischen 2 und 6.5 MeV um 5-10% unter und zwischen 800 keV und 2 MeV um 10-15% über den hier empfohlenen Werten und daher durchaus im Bereich ihrer Unsicherheiten. Neben einer starken Reduktion des totalen inelastischen Querschnitts hat Kiefhaber jedoch auch die sicherlich überholten und mit den differentiellen Messungen nur schwer zu vereinbarenden inelastischen Streumatrizen des ABN-Satzes neu eingeführt, was im Energiebereich zwischen 400 keV und 1.4 MeV eine ähnliche Wirkung wie die Reduktion des totalen inelastischen Querschnitts hat. Außerdem wurde im KFKINR-Satz im Energiebereich oberhalb 2 MeV für den Parameter γ der Maxwellverteilung der inelastisch gestreuten Neutronen der Wert 0.099 eingeführt. Wie man aus Abb.46 erkennt, unterscheidet sich der in dieser Arbeit abgeleitete Einfangquerschnitt nur im Energieintervall 45 keV bis 100 keV, wo er etwas oberhalb liegt von den KFKINR-Daten. Da es sich beim KFKINR-Satz um einen 26-Gruppensatz mit SNR-Wichtungsspektrum handelt, ist er nicht ohne weiteres auf die Berechnung der Uranblockspektren anwendbar (vgl. Abschnitt 4). Daher wurde das Verhältnis der Spektren von 26 Gruppenrechnungen mit den KEDAK-Daten, die dazu mit der SNR-Stoßdichte gewichtet wurden, und dem KFKINR-Satz mit dem Verhältnis aus 208-Gruppenrechnung mit KEDAK und Messung verglichen. Wenn die Daten des KFKINR-Satzes die Uranblockspektren richtig wiedergeben, sollten sich diese Verhältnisse nur wenig unterscheiden. Wie man aus Abb.56 erkennt, ist die Übereinstimmung zwischen 20 keV und 800 keV ausgezeichnet. Zwischen 800 keV und 1.4 MeV

besitzen die mit dem KFKINR-Satz berechneten Spektren jedoch eine deutlich höhere Neutronenintensität, was zweifellos auf die ABN-Matrizen zurückzuführen ist. Die etwas geringere Neutronenintensität zwischen 1.4 und 2.5 MeV wird dagegen durch die höheren totalen inelastischen Querschnitte des KFKINR-Satzes in diesem Intervall verursacht. Die Verschiebung der maximalen spektralen Änderung zu niedrigen Energien, die aus Abb.56 erkennbar ist, spricht gegen die Einführung der ABN-Matrizen in diesem Energiebereich. Der KFKINR-Satz ist ein deutlicher Fortschritt für die Berechnung der Kritikalitätswerte schneller Reaktoren. Bis auf wenige Ausnahmen werden die k_{eff}-Werte der untersuchten Reaktoren mit einer Genauigkeit von ±1% wiedergegeben. Die im KFKINR-Satz ausgedrückte Tendenz, den inelastischen Streuquerschnitt von ²³⁸U stark zu reduzieren, wird durch die Schlußfolgerungen dieser Arbeit experimentell untermauert. Welchen Einfluß die beschriebenen Unterschiede der totalen inelastischen Streuquerschnitte und Matrizen des KFKINR-Satzes und der hier abgeleiteten Daten auf die Berechnung der Kritikalität haben, hat Kiefhaber für eine Anzahl schneller Anordnungen untersucht, indem er zunächst den totalen inelastischen Querschnitt dieser Arbeit einführte und in einem zweiten Schritt die ABN-Matrizen durch die KEDAK-Matrizen ersetzte. Wenn man annimmt, daß die kombinierten Änderungen sich additiv aus den Kritikalitätsänderungen der beiden Schritte zusammensetzen, so erhält man die folgenden, in Tabelle 6 dargestellten Differenzen zwischen berechneten und gemessenen k_{eff}-Werten¹²³. Eine eindeutige Verbesserung oder Verschlechterung der Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten k_{eff}-Werten kann aus der Spalte IV der Tabelle 6 nicht entnommen werden. Aus einem Vergleich der Spalten I und III wird insbesondere deutlich, welch großen Einfluß die ABN-Matrizen auf die Kritikalitätswerte haben. Dieser wird nur bei einigen Anordnungen und auch dort nur teilweise durch die unterschiedlichen Änderungen des totalen inelastischen Querschnitts kompensiert. Es muß jedoch betont werden, daß hier nur die Unterschiede zwischen dem KFKINR-Satz und den in dieser Arbeit empfohlenen Querschnitten diskutiert wurden. Der in beiden



Abb.56 Vergleich von experimentellen und theoretischen Spektren, berechnet mit KEDAK bzw. KFKINR-Gruppenkonstanten (Uranblock Pos.28 = 71 cm von der Quelle)

Anordnung	^k eff,ber. ^{- k} eff,exp.				
Anorunung	I KFKINR-Satz	II KFKINR-Satz, aber ^σ n' ^{=σ} n',adj. ^{zwischen} O.l und 6.5 MeV	III KFKINR-Satz,aber ABN-Matrizen durch KEDAK-Matrizen ersetzt	IV KFKINR-Satz, aber Änderungen II + III	
SUAK UIB	- 0.008	- 0.0092	- 0.0024	- 0.0036	
SUAK UH1B	- 0.020	- 0.0209	- 0.0163	- 0.0172	
ZPR III-10	+ 0.001	- 0.0005	+ 0.0055	+ 0.0040	
ZPR III-25	± 0.	- 0.0035	- 0.0011	- 0.0046	
ZPR III-55	+ 0.011	+ 0.0099	+ 0.0069	+ 0.0058	
ZEBRA-8H	- 0.005	- 0.0108	- 0.0144	0.0202	
ZPR IX-25	- 0.005	- 0.0101	- 0.0138	0.0189	
SNEAK-6A-Z1	+ 0.007	+ 0.0066	+ 0.0057	0.0053	
SNEAK-7B	+ 0.012	+ 0.0107	+ 0.0096	0.0083	

Tabelle 6	Einfluß von Änderungen des inelastischen Streuquerschnitts von	238 _U	auf	die
	k _{eff} -Werte einiger Testanordnungen			

Datensätzen gemeinsam vollzogene Schritt einer Reduktion des totalen inelastischen und des Einfangquerschnitts bringt natürlich auch in den Kritikalitätsberechnungen eine wesentliche Verbesserung gegenüber den KEDAK-Daten^{122,124}.

12) Schlußfolgerungen

Die vorliegende Arbeit hat gezeigt, daß die Interpretation von zuverlässigen und sorgfältig durchgeführten Neutronenspektrumsmessungen zur Verbesserung von Wirkungsquerschnitten, die für die Reaktorberechnung von Wichtigkeit sind, benutzt werden kann. Notwendige Voraussetzung dazu ist, daß die Spektren der betreffenden Anordnung eine möglichst große und eindeutige Empfindlichkeit gegen Änderungen des untersuchten Wirkungsquerschnitts besitzen. In den meisten Fällen bedeutet das, daß es sich um Ein-Material-Anordnungen handeln muß. Aber auch dann, wenn die Diskrepanzen zwischen theoretischen und experimentellen Spektren nicht völlig eindeutig auf einen Wirkungsquerschnittstyp zurückzuführen sind, können die Resultate von großem Wert bei der Auswertung von differentiellen Querschnittsmessungen oder bei der Aufstellung von Gruppenkonstantenbibliotheken sein. Die außerordentlich großen experimentellen Schwierigkeiten bei der Bestimmung der einzelnen inelastischen Anregungsquerschnitte sowie des totalen inelastischen Streuguerschnitts von ²³⁸U oberhalb etwa 1 MeV lassen es unwahrscheinlich erscheinen, daß in naher Zukunft wesentlich bessere differentielle Meßergebnisse in diesem Energiebereich zur Verfügung stehen werden. Teilerfolge, die vielleicht bei der Bestimmung der Lage der Energieniveaus oder bei einer Verbesserung der Kernmodelle zu erwarten sind, sollten jedoch bei der Aufstellung von Gruppenkonstanten für die Reaktorberechnung mit den Resultaten dieser Arbeit abgestimmt werden. Es muß betont werden, daß aus den Meßergebnissen dieser Arbeit in erster Linie konsistente totale inelastische Streuquerschnitte und Streumatrizen abgeleitet wurden. Eine Änderung der letzteren muß daher stets eine Änderung der ersteren nach sich ziehen.

- T.A. Love, R.B. Murray: The use of surface-barrier diodes for fast neutron spectroscopy; IRE Trans. Nucl. Sci. NS 8, No.1 (1961), 91
- G. Dearnaly, A.T.G. Ferguson, G.G. Morrison: Semiconductor fast neutron detectors; IRE Trans. Nucl. Sci. NS 9, No.3 (1962), 174
- 3) G. Dearnaly, A.T.G. Ferguson: The new semiconductor detectors for fast neutrons; Nucleonics Vol.20, No.4 (1962), 84
- 4) A. Lauber: Measurement of fast neutron spectra in reactors by means of semiconductor "sandwich" spectrometers; Proc. of the Symp. on Fast and Epithermal Neutron Spectra in Reactors, Harwell 11-13 Dec. 1963
- 5) C. Beets, P. Colle, H. Deckes, G. Gierts, S. De Leeuw: Examen des possibilités des methodes directes en analyse spectrale des neutrons intermediaires et rapides; Proc. of the Symp. on Fast and Epithermal Neutron Spectra in Reactors, Harwell 11-13 Dec. 1963
- 6) M.E. Lee, S.B. Wright: Measurement of the fast neutron spectrum in a fast reactor using a ⁶Li semiconductor spectrometer; Proc. of the Symp. on Fast and Epithermal Neutron Spectra in Reactors, Harwell 11-13 Dec. 1963
- 7) S. Passe: Comparaison d'un spectre des neutrons rapides mesuré avec des emulsions nucleaires et un spectrometre ⁶Li; Proc. of the Symp. on Fast and Epithermal Neutron Spectra in Reactors, Harwell 11-13 Dec. 1963

- 8) M.E. Lee, M.L. Awcock: A Helium-3-filled semiconductor counter for the measurement of fast neutron spectra; Neutron Dosimetry Vol.1, IAEA Proc., Wien 1963, S.441
- 9) M.G. Silk: Attempts to determine the fast neutron spectrum in a thermal reactor by means of ⁶Li and ³He semiconductor spectrometers; AERE-M-1590 (1965)
- 10) C. Beets, M. Lott: Analyse spectrale des neutrons rapides au moyen de la reaction ⁶Li(n,t)⁴He; Neutron Dosimetry Vol.1, IAEA Proc., Wien 1963, S.293
- 11) M.E. Windsor, S.B. Wright: Measurement of the fast neutron spectrum in a fast reactor by a ⁶Li semiconductor spectrometer; Journ. of Nucl. Energy Part A/B, Vol.20 (1966) 465
- 12) R.J. Huber: In-core experiments with a ⁶Li "sandwich" fast neutron spectrometer; ANS-SD-2 (1965)
- 13) M.G. Silk:

The determination of the fast neutron spectrum in thermal reactors by using ${}^{6}\text{Li}$ and ${}^{3}\text{He}$ semiconductor spectrometers; AERE-R-5183 (1966)

14) M.G. Silk:

The determination of the fast neutron spectrum in positions of the Daphne reflector; AERE-R-5347

15) M.G. Silk:

The determination of fast neutron spectra in thermal reactors by means of a high resolution semiconductor spectrometer; Nucl. Instr. Meth. 66 (1968) 93

- 16) H. Bluhm, D. Stegemann: Theoretical and experimental investigations for an improved application of the ⁶Li semiconductor sandwich spectrometer; Nucl. Instr. and Methods, Vol.70 (1969) 141
- 17) T.L. Young: Investigation of a ⁶Li semiconductor sandwich spectrometer for its characteristics and performances; Nucl. Instr. and Methods 100 (1972) 533
- 18) J. Bok, B. de Cosnac, J.P. Noel, R. Schuttler: Spectromètre à neutrons rapides à lithium-6 et diodes au silicium; Nucl. Electronics, Vol.I, IAEA Proc., Wien 1962, S. 415
- 19) E. Saki: Semiconductor counter and its applications for neutron measurement; Nucl. Electronics, Vol.I, IAEA Proc., Wien 1962, S. 551
- 20) P. Cloth, R. Hecker: Bestimmung der Energieverteilung von Neutronen einer Am-Be- und einer Cf²⁵²-Quelle mit Hilfe eines ³He-Halbleiter-Sandwich, Spektrometers; Nukleonik, Bd.12, Heft 4 (1969) 163
- 21) T.R. Herold: Neutron spectrum of ²³⁸PuF₄; Nucl. Instr. and Methods 71 (1969) 40
- 22) T.R. Jeter, M.C. Kennison: Recent improvements in ³He solid state neutron spectrometry; IEEE Trans. Nucl. Sci. NS 14(1) (1967) 422
- 23) A.W. Manning et al.: ³He spectrometer characteristics and applications; Nucleonics 23 (4) (1965) 69

- 24) G. De Leeuw, S. De Leeuw: Mesure en pile de reponses en energie de tritons obtenus par la reaction ⁶Li(n,t)⁴He et detectés au moyen de detecteurs à semi-conducteurs; Fast Reactor Physics, Vol.I, IAEA Proc., Wien 1968, S.277
- 25) I.C. Rickard: Neutron spectrometry in the energy range 1-100 keV using the ⁶Li sandwich spectrometer; Nucl. Instr. and Methods 82 (1970) 287
- 26) C. Maroni, F. Russo, E. Varondini: A new type of neutron spectrometer in the energy range 1-100 keV; Nucl. Instr. and Methods 74 (1969) 256
- 27) G. De Leeuw-Gierts, S. De Leeuw: Improvements in the use of the 6 Li(n, α)t-reaction for in-core neutron spectrum measurements; BLG 450
- 28) C. De Leeuw-Gierts, S. De Leeuw: BLG 428
- 29) W. Whaling: The energy loss of charged particles in matter; Handbuch der Physik, Bd.XXXIV, Springer-Verlag (1958)
- 30) A. Bergström. S. Schwarz, L.G. Stromberg: Remarks on the 6 Li(n, α)t cross section in the region $1 \le E_n \le 600$ keV, CCDN-NW 3 (1966)
- 31) E.R. Rae, C.A. Uttley, M.G. Sowerby and B.H. Patrick: A review of the data on the ⁶Li cross sections below 1.7 MeV; EANDC-Symposium on Neutron Cross Section Standards (Argonne 1970) CONF. 701002
- 32) A.J. Debruytter: Cross sections and techniques for high precision neutron nuclear data measurements; Nuclear Data for Reactors, Vol.I, IAEA Proc., Wien 1970, S.127

- 33) M.G. Sowerby: IAEA Report 107 (1968)
- 34) M.G. Silk, S.B. Wright: Neutron spectrum measurements over a wide energy range using a single semiconductor spectrometer; AERE-R-6060
- 35) H. Bluhm: Neutronenspektroskopie mit einem ⁶Li-F-Halbleiterspektrometer; Diplomarbeit Universität Karlsruhe (1967)
- 36) M.G. Sowerby, B.H. Patrick, C.A. Uttley, K.M. Diment: The ratio of the ${}^{6}\text{Li}(n,\alpha)$ to ${}^{10}\text{B}(n,\alpha)$ cross section from 10 keV to 80 keV and recommended values of the ${}^{10}\text{B}(n,\alpha)$ cross section; AERE-R-6316
- 37) C.A. Uttley, K.M. Diment: UKAEA Reports AERE-PR/NP 14 (1968), 15 (1969) und 16 (1969)
- 38) M.S. Coates, G.J. Hunt, C.A. Uttley: Measurement of standard cross sections using the Harwell block detector; Nuclear Physics Division Progress Report AERE-PR/NP 18 (1972) 14
- 39) J. Als-Nielsen: Neutron cross sections for ³He in the energy range O-10 MeV; CCDN-NW/6 (1967)
- 40) J.H. Gibbons, R.L. Macklin: Total neutron yields from light elements under proton and alpha bombardement; Phys. Rev. 114 (1959) 571
- 41) R.L. Macklin, J.H. Gibbons: Int. Conf. on the Study of Nucl. Struct. with Neutrons; Antwerpen 1965, EANDC-50-S, Vol.I
- 42) J.E. Perry et al.: reported by J.D. Seagrave in Proc. of Conf. on Nuclear Forces and the Few Nuclean Problem, Vol.2, Pergamon Press,

Oxford (1960), S.583

- 43) W.E. Wilson, R.L. Walter, D.B. Fosson: Differential cross sections for the T(p,n)³He reaction; Nucl. Phys. 27 (1961) 421
- 44) G.F. Bogdanov et al.: The reaction T(p,n)³He at 7-12 MeV proton energy; Soviet Phys. JETP 9 (1959) 440
- 45) A.R. Sayres, K.W. Jones, C.S. Wu: Interaction of neutrons with ³He; Phys. Rev. 122 (1961) 1853
- 46) J.D. Seagrave, L. Cranberg, J.E. Simmons: Elastic scattering of fast neutrons by tritium and ³He; Phys. Rev. 119 (1960) 1981
- 47) R. Batchelor, R. Anes, T.H.R. Skyrme: Rev. Sci. Instr. 26 (1955) 1037
- 48) D.G. Costello, S.J. Friesenhahn, W.M. Lopez: ³He(n,p)T cross section from 0.3 to 1.16 MeV; Nucl. Sci. and Engineering 39 (1970) 409
- 49) E.D. Pendlebury: Neutron cross sections of ⁶Li in the energy range 0.001 eV - 15 MeV; AWRE 0-60/64 (1964)
- 50) R.A. Rydin: Design considerations and calculations for a ⁶Li semiconductor sandwich fast neutron spectrometer experiment; EUR 2712.e (1966)
- 51) R.A. Rydin:

Resolution, efficiency and background effects in semiconductor sandwich fast neutron spectrometers; EUR 2994.e (1966)

- 52) H. Bluhm et al.: Intercomparison of differential neutron spectrometry technique in the Mol $\Sigma\Sigma$ fast assembly; KFK 1658 (1972)
- 53) M.G. Strauss, R. Brenner: General purpose analog pulse height computer; Rev. Sci. Instr. Vol.36, No.12 (1965) 1851
- 54) M.G. Silk: The efficiency of semiconductor sandwich spectrometers in directional neutron fluxes; AERE-R-5470 (1967)
- 55) R.B. Moler, W.E. Zagotta: Development of neutron spectrometry for critical assemblies; IITRI-578P31-1 (1967)
- 56) M.G. Silk, M.E. Windsor: Corrections to spectra measured by ⁶Li and ³He semiconductor spectrometers in an isotropic neutron flux; Journal of Nucl. Energy 21, No.1 (1967) 17
- 57) H. Goldstein: Klassische Mechanik; Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt a. Main, 1963
- 58) N.P. Buslenko, J.A. Schreider: Die Monte-Carlo-Methode und ihre Verwirklichung mit elektronischen Digitalrechnern; B.G. Teubner Verlagsgesellschaft, Leipzig, 1964
- 59) M.D. Goldberg, J.D. Anderson, J.P. Stoering, C. Wang: Angular Distributions of T(p,n)³He Neutrons for 3.4 to 12.4 MeV Protons; Phys. Rev. Vol.122 (1961) 1516

60) J.D. Segrave:

The T(p,n)³He reaction and its inverse; in Nuclear Forces and the Few-Nucleon Problem, Vol.II, S.586, herausgegeben von T.C. Griffith und E.A. Power, Pergamon Press, Oxford 1960

- 61) J.H. Gibbons, H.W. Newson: The ⁷Li(p,n)⁷Be reaction; in Fast Neutron Physics, Part I, S.133, herausgegeben von J.B. Marion, J.L. Fowler, Interscience Publishers, New York, 1960
- 62) J.J. Schmidt: General status of nuclear data requirements; Nuclear Data for Reactors, Vol.I, IAEA Proc., Wien 1970, S.3
- 63) W. Davey:

An analysis of the fission cross sections of 232 Th, 233 U, 234 U, 235 U, 236 U, 237 Np, 238 U, 239 Pu, 240 Pu, 241 Pu - 1d 242 Pu from 1 keV to 10 MeV; Nucl. Sci. Eng.26 (1966) 149 und Selected fission cross sections for 232 Th, 233 U, 234 U, 235 U, 236 U, 237 Np, 238 U, 239 Pu, 240 Pu, 241 Pu and 242 Pu; Nucl. Sci. Eng.32 (1968) 35

64) H. Werle:

Neutron spectrometry with proton-recoil proportional counters in the energy region up to 10 MeV; Nucl. Instr. and Methods 99 (1972) 295

- 65) H. Werle, H. Bluhm: Fission neutron spectra measurements of ²³⁵U, ²³⁹Pu and ²⁵²Cf; Journal of Nuclear Energy, Vol.26 (1972) 165
- 66) E.A. Fischer: Design and cell structure of the assembly SNEAK 8; unveröffentlicht
- 67) G. Kußmaul: Vorbereitende Rechnungen für die Ladung 6 des STARK; unveröffentlicht
- 68) A. Fabry, P. Vandeplas: Generation of intermediate standard neutron spectra and their application in fast reactor physics; Fast Reactor Physics, Vol.I, IAEA Proc., Wien 1968, S.389

- 69) A.H. Snell et al.: Studies in a five ton metal pile; University of Chicago, Metallurgical Project, Report CF-589 (1943)
- 70) F.H. Martens ed.: The fast exponential experiment; Report ANL-5379 (1955)
- 71) J.J. Neuer, C.B. Stewart: Preliminary survey of uranium metal exponential columns; Report LA 2023 (1956)
- 72) C.G. Chezem: A uranium metal exponential experiment; Nucl. Sci. and Eng.8 (1960) 652
- 73) J.L. Campan, P.P. Clauzon, B. Kirchner, P. Ribon, C.P. Zaleski: Etude de la propagation des neutrons dons l' uranium naturel; Report CEA, 1997 (1961)
- 74) A.J. Leipunsky et al.: Studies in the physics of fast neutron reactors; Proc. of the 2nd UN International Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, 1.9.-13.9.1958, Vol.12, Genf 1958
- 75) J.M. Neill, T. Gozani, J.L. Russel: Fast neutron spectra in a depleted uranium sphere; Trans. Am. Nucl. Soc., Vol.10 (1967)
- 76) N.N. Kaushal, B.K. Malaviga, E.R. Gaerttner: Kinetic studies in a depleted uranium assembly; Trans. Am. Nucl. Soc., Vol.12 (1969)
- 77) E.F. Bennett, T.J. Yule: Fast neutron spectra in uranium metal; Report ANL 7610 (1970)
- 78) W. Hoebel: Das Karlsruher zweidimensionale Multigruppendiffusionsprogramm DIXY; unveröffentlicht

- 79) B. Nicolaenko: Energy dependent neutron transport theory in the fast domain; Thesis, University of Michigan (1968)
- 80) C. Günther, W. Kinnebrock: Das eindimensionale Transportprogramm DTK; KFK-1381 (1971)
- 81) C. Günther, W. Kinnebrock: SNOW, ein zweidimensionales S_n-Programm zur Lösung der Neutronentransportgleichung in Platten- und Zylindergeometrie; unveröffentlicht
- 82) M.M.R. Williams: Approximate solutions of the neutron transport equation in two and three dimensional systems; Nukleonik Bd.9, Heft 7 (1967) 305
- 83) L.P. Abagjan, N.O. Bazazjanc. L.I. Bandarenko, M.N. Nikolaev: Gruppenkonstanten schneller und intermediärer Neutronen für die Berechnung von Kernreaktoren; KFK-tr-144
- 84) H. Huschke:Die Beschreibung der Datei Gruba für 208-Energiegruppen,Teil I, Gruba-Notiz Nr. 1; unveröffentlicht
- 85) H.H. Knitter, M. Cappola, N. Akmed, B. Jay: Scattering of fast neutrons on ²³⁸U, average energy and angular distributions of fission neutrons; Z. Physik 244 (1971) 358
- 86) W.P. Poenitz: Recent experimental data for heavy nuclei; Nuclear Data for Reactors, Vol.II, IAEA Proc., Wien 1970, S.3
- 87) D. Kopsch, S. Cierjacks, G.J. Kirouac: New total neutron cross section measurement of uranium between 0.5-4.35 MeV; Nuclear Data for Reactors Vol.II, IAEA Proc., Wien 1970, S.39
88) J. Cabe et al.:

Mesures des sections efficaces totales neutroniques du carbone, du nickel, de l'uranium-235 de l'uranium-238 et du plutonium-239 entre O.1 MeV et 6 MeV; Nuclear Data for Reactors, Vol.II, IAEA Proc., Wien 1970, S.31

89) A.B. Smith:

Fast neutron data diagnosis and prognosis; ANS National Topical Meeting on New Developments in Reactor Physics and Shielding, Sept.12-15, 1972, CONF-720901, Book 2, 1063

90) R.W. Lamphere:

Fission cross sections of the uranium isotopes 233, 234, 236 and 238 for fast neutrons; Phys. Rev. 104 (1956) 1654

- 91) W.E. Stein, R.K. Smith, H.L. Smith: Relative fission cross sections of ²³⁶U, ²³⁸U, ²³⁷Np and ²³⁵U; Proc. Conf. on Neutron Cross Sections and Technology, Washington D.C., NBS Publications 299, 1 (1968) 503
- 92) P.H. White, G.P. Warner: The fission cross sections of ²³³U, ²³⁴U, ²³⁶U, ²³⁸U, ²³⁷Np, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu and ²⁴¹Pu relative to that of ²³⁵U for neutrons in the energy range 1-14 MeV; Journal of Nuclear Energy 21 (1967) 671
- 93) T.A. Pitterle: Evaluation of ²³⁸U neutron cross sections for the ENDF/B file; Nuclear Data for Reactors, Vol.II, IAEA Proc., Wien 1970, S.687
- 94) I. Szabo, J.P. Marquette, E. Fort, J.L. Leroy: Mesure absolue de la section efficace de fission de l' uranium-235 et du plutonium-239 entre 0.025 et 1 MeV; Nuclear Data for Reactors, Vol.I, IAEA-Proc., Wien 1970, S.229

- 95) J.J. Schmidt: Neutron cross sections for fast reactor materials; KFK-120 (1966)
- 96) Prompt Fission Neutron Spectra; IAEA Proc. of a consultants meeting, Wien, 1972
- 97) J.A. Grundl: A study of fission neutron spectra with high-energy activation detectors, Part II: fission spectra; Nucl. Sci. Eng.31 (1968) 191
- 98) W.N. McElroy: Implications of recent fission-averaged cross section measurements; Nucl. Sci. Eng.36 (1969) 109
- 99) W.G. Davey: An analysis of the neutron capture cross section of ²³⁸U between 1 keV and 15 MeV; Nucl. Sci. Eng.39 (1970) 337
- 100) J.F. Barry, J. Bunce, P.H. White: Cross section for the reaction ²³⁸U(n,γ)²³⁹U in the energy range 0.12-7.6 MeV; J. Nucl. Energy A/B 18 (1964) 481
- 101) H.O. Menlove, W.P. Poenitz: Absolute radiative capture cross sections for fast neutrons in ²³⁸U; Nucl. Sci. Eng.33 (1968) 24
- 102) M.C. Moxon: AERE-R-6074 (1969)
- 103) R.L. Macklin, P.J. Pasma, J.H. Gibbons: WASH-1046 (1964) 88
- 104) M.C. Moxon, E.R. Rae: A gamma-ray detector for neutron capture cross section measurements; Nucl. Instr. Methods 24 (1963) 445

- 105) J.G. Panitkin, W.A. Tolstikow, J. Stawitskiy: Radiative capture of neutrons by ²³⁸U in the energy range 24-145 keV; Nuclear Data for Reactors, Vol.II, IAEA Proc., Wien 1970, S.57
- 106) M.P. Fricke et al.: Measurements of cross sections for the radiative capture of 1 keV to 1 MeV neutrons by Mo, Rh, Gd, Ta, W, Re, Au and ²³⁸U; Nuclear Data for Reactors, Vol.II, IAEA Proc., Wien 1970, S.265
- 107) S. Igarasi et al.: Analysis of neutron inelastic scattering by ²³⁸U; Nuclear Data for Reactors, Vol.II, IAEA Proc., Wien 1970, S.869
- 108) A.B. Smith: Scattering of fast neutrons from natural uranium; Nucl. Phys.47 (1963) 633
- 109) A.B. Smith, zitiert von P. Lambropoulos in Fast neutron total and scattering cross sections of uranium-238; Nucl. Sci. Eng.46 (1971) 356
- 110) E. Barnard et al.: Scattering of fast neutrons by ²³⁸U; Nucl. Phys. 80 (1966) 46
- 111) E. Barnard, J.A.M. de Villiers and D. Reitmann: Inelastic scattering of fast neutrons from ²³⁸U; Nuclear Data for Reactors, Vol.II, IAEA Proc., Wien 1970, S. 107

112) A. Prince:

Analysis of high-energy neutron cross sections for fissile and fertile isotopes; Nuclear Data for Reactors, Vol.II, IAEA Proc., Wien 1970, S.825

- 113) L. Cranberg, J.S. Levin: Inelastic neutron scattering by ²³⁸U; Phys. Rev.109 (1958) 2063
- 114) R. Batchelor, W.B. Gilboy, J.H. Towle: Neutron interactions with U²³⁸ and Th²³² in the energy region 1.6 MeV to 7 MeV; Nucl. Phys.65 (1965) 236
- 115) J.R. Beyster, M. Walt, E.W. Salmi: Interaction of 1.0, 1.77, 2.5, 3.25 and 7.0 MeV neutrons with nuclei; Phys. Rev.104, 1319 (1956)
- 116) M.H. Mac Gregor, R. Booth, W.P. Boll: Nonelastic neutron cross section measurements on Li^6 , Li^7 , U^{235} , U^{238} , and Pu^{239} at 8.1, 11.9 and 14.1 MeV; Phys. Rev.130, 1471 (1963)
- 117) H.A. Bethe, J.R. Beyster, R.E. Carter: Report LA-1939 (1955)
- 118) P.W. Benjamin et al.: The use of a gas-filled spherical proportional counter for neutron spectrum measurements in a zero energy fast reactor; AWRE-NO-2/64 (1964)
- 119) E.F. Bennett: Fast neutron spectroscopy by proton recoil proportional counting; Nucl. Sci. Eng.27 (1967) 16
- 120) P.W. Benjamin et al.: The analysis of recoil proton spectra; AWRE-0-9/68 (1968)
- 121) K.H. Blank, H. Seufert: An automatic sample changer with a special changing method for γ - and γ - γ -active sources; Nucl. Instr. Meth.46 (1967) 86

122) E. Kiefhaber:

The KFKINR-set of group constants, nuclear data basis and first results of its application to the recalculation of fast zero power reactors; KFK-1572 (1972)

- 123) E. Kiefhaber: Private Mitteilung
- 124) J.M. Kallfelz, B.A. Zolotar, B.R. Sehgal: Modifications to fissile element cross sections and their influence on calculated fast reactor parameters; ANL-7610 (1969) 224
- 125) E.A. Fischer: Private Mitteilung