

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

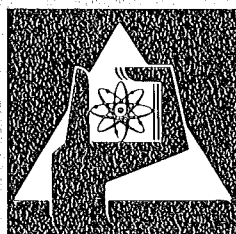
September 1975

KFK 2191

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Messungen des Verhältnisses der Wirkungsquerschnitte von  
 $^{235}\text{U}$  für Einfang und Spaltung im Neutronenenergiebereich  
von 200 eV bis 20 keV

C. S. Yen



**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 2191

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Messungen des Verhältnisses der Wirkungsquerschnitte von  
 $^{235}\text{U}$  für Einfang und Spaltung im Neutronenenergiebereich  
von 200 eV bis 20 keV

---

C. S. Yen

Dissertation genehmigt von der Fakultät für  
Maschinenbau der Universität Karlsruhe

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe



## Zusammenfassung

Das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte von  $^{235}\text{U}$  für Einfang und Spaltung,  $\alpha$ , wurde im Neutronenenergiebereich von 200 eV bis 20 keV mit dem Bremszeitspektrometer gemessen. Die Summe der Einfang- und Spaltrate wurde mit einem Gammaproportionalzählrohr, das von den zu untersuchenden zylindrischen Proben umschlossen war, bestimmt. Zur Bestimmung der Spaltrate allein, wurde eine Spaltkammer verwendet.

Eine sorgfältige Eichmessung des Zählrohrs wurde an der thermischen Säule des STARK durchgeführt. Die gewonnenen  $\alpha$ -Werte von  $^{235}\text{U}$  besitzen einen mittleren Fehler von 13% bis 20%. Auf Grund der Fehlerfortpflanzung resultieren etwa 80% des gesamten Fehlers aus Unsicherheiten in den Eichfaktoren.

Measurements of the ratio of  $^{235}\text{U}$  cross sections for capture and fission in the neutron energy range from 200 eV to 20 keV

---

## Abstract

The ratio of  $^{235}\text{U}$  cross sections for capture and fission,  $\alpha$ , has been measured in the neutron energy range from 200 eV to 20 keV with the slowing-down-time spectrometer. A gamma proportional counter surrounded by the cylindrical  $^{235}\text{U}$  samples was used to determine the sum of capture and fission events. The fission rate alone has been measured with a fission chamber.

A careful calibration of the counters has been carried out at the thermal column of the STARK-reactor. The measured  $\alpha$ -values of  $^{235}\text{U}$  have an error between 13% and 20%. Due to the error propagation, about 80% of the total error result from inaccuracies in the calibration factors.

Die vorliegende Arbeit wurde im Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik des Kernforschungszentrums Karlsruhe angefertigt. Herrn Professor Dr. K. Wirtz, dem Leiter des Instituts, danke ich, daß er mir die Durchführung dieser Arbeit ermöglichte. Herrn Professor Dr. D. Stegemann bin ich für die Aufgabenstellung und wertvolle Anregungen zu großem Dank verpflichtet.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Dipl.-Phys. M. Kühle und Herrn Dr. H. Bluhm für die kritische Durchsicht des Manuskripts.

## Inhaltsverzeichnis

Seite

1. Einleitung	1
1.1 Überblick über Methoden zur Messung von $\alpha(E)$	1
2. Prinzip des Bremszeitspektrometers	5
2.1 Beziehung zwischen mittlerer Neutronenenergie und Abbremszeit	6
2.2 Neutronenfeld im Bleipile	8
2.3 Auflösungsvermögen	11
3. Meßmethode	16
4. Aufbau und Durchführung der Experimente	20
4.1 Eigenschaften des $\gamma$ -Proportionalzählrohrs	20
4.2 Durchführung der Eichmessungen	29
4.2.1 Experimenteller Aufbau	29
4.2.2 Auswertung der Eichmessungen	32
4.2.3 Fehlerdiskussion der Eichmessung	39
4.3 Aufbau und Durchführung der Messungen am Bremszeitspektrometer	39
4.3.1 Beschreibung der Anlage	39
4.3.2 Messvorgang am Bremszeitspektrometer	43
4.3.3 Vorteile des gewählten experimentellen Aufbaus	48
5. Auswertung der Messungen	49
5.1 Selbstabschirmung in den Proben	49
5.2 Totzeit-Effekte	52
5.3 Schwächung des zeitabhängigen $\gamma$ -Untergrunds durch die Proben	53
5.4 Streueffekte im $\gamma$ -Zählrohr	56
5.5 Fehlerdiskussion der gemessenen $\alpha$ -Werte	57
6. Meßergebnisse und Vergleich mit anderen Messungen	58

7. Zusammenfassung	67
Literaturverzeichnis	68
<u>Anhang</u> Berechnung der Abhängigkeit der Reaktions- raten von der Foliendicke bei thermischer Neutronenenergie	73



## 1. Einleitung

Der Einfluß des Einfangquerschnitts auf die kritische Masse, die Bruttrate und die Sicherheitsanalyse von schnellen Reaktoren mit U-235 Brennstoff ist bekannt und das European-American Nuclear Data Committee (EANDC) hat daher als gewünschte Genauigkeit für den Einfangquerschnitt von U-235  $\pm 5\%$  im Energiebereich unterhalb 2 keV angegeben /1/.

Infolge der Schwierigkeiten, die bei der Trennung von Spalt- und Einfangereignissen, bei der Bestimmung des Neutronenflusses, des Untergrunds und der Eichfaktoren bestehen, sind die gemessenen Einfangquerschnitte von spaltbaren Isotopen mit großen Fehlern behaftet.

Da Spaltquerschnitte wesentlich einfacher und genauer bestimmt werden können als Einfangquerschnitte, ist es möglich, letztere aus einer direkten Messung des Verhältnisses  $\alpha = \sigma_c / \sigma_f$  zu berechnen.

Die bisher gemessenen  $\alpha$ -Werte von  $^{235}\text{U}$  weisen im Energiebereich von einigen hundert eV bis zu etwa 20 keV große Diskrepanzen auf:  $20 \sim 60\%$ . Das hier beschriebene Experiment soll zur Klärung dieser Diskrepanzen beitragen.

Ziel dieser Arbeit war daher die Messung der  $\alpha$ -Werte von  $^{235}\text{U}$  im Energiebereich von 0.2 keV bis 20 keV mit einem Bremszeitspektrometer.

### 1.1 Überblick über Methoden zur Messung von $\alpha(E)$

Die meisten bisher angewandten Methoden zur Messung von  $\alpha(E)$  können entweder nach der Art der verwendeten Neutronenquelle oder nach der Methode, die zur Trennung der Einfang- und Spalttereignisse angewendet wurde, eingeteilt werden.

Für  $\alpha(E)$ -Messungen verwendete Neutronenquellen:

---

Zum Druck eingereicht am: 6.8.1975

### Gepulster schneller Reaktor

Hierbei wird ein schneller Reaktor durch eine rasche Änderung seiner Reaktivität gepulst. Innerhalb des Leistungsimpulses ist er überkritisch, außerhalb unterkritisch. Der Forschungsreaktor IBR im russischen Kernforschungszentrum DUBNA /2/ ist ein Beispiel für diesen Typ von Neutronenquelle. Seine mittlere Leistung beträgt 1 KW. Die Halbwertsbreite des Leistungspeaks ist 36  $\mu$ s, die Periode 8 bis 80 Impulse/sec. Bei einer Flugweglänge von 1000 m beträgt das Auflösungsvermögen 0.04  $\mu$ s/m. Diese Neutronenquelle wurde bei den in /3 - 5/ beschriebenen  $\alpha(E)$ -Messungen verwendet.

### Van de Graaff-Beschleuniger

Der Van de Graaff-Beschleuniger mit den Reaktionen  ${}^7\text{Li}(p,n)$   ${}^7\text{Be}$  und  $T(p,n)$   ${}^3\text{He}$  eignet sich insbesondere für die Messung von  $\alpha(E)$  oberhalb etwa 100 keV /6 - 8/. Für diese Neutronenenergien muß der gepulste Beschleuniger unmittelbar oberhalb der Reaktionsschwelle betrieben werden. Die Neutronenenergie wird mit der Flugzeit-Methode bestimmt.

### Elektronen-Linear-Beschleuniger

Die Neutronen werden durch die Bremsstrahlung beschleunigter Elektronen, die auf Targets mit hoher Ordnungszahl auffallen, erzeugt. Targets aus Tantal und Wolfram werden meistens verwendet. Der große Vorteil dieser Anlagen ist ihre hohe Neutronenintensität, welche lange Flugwege und damit sehr gute Energieauflösung ermöglicht. Die Anlage ORELA in Oak Ridge ist ein typisches Beispiel für solch einen Beschleuniger /9, 10/.

Für die Trennung der Einfang- und Spaltereignisse werden hauptsächlich zwei Methoden benutzt:

### a) Die Trennung mit einer Spaltkammer

Die Spaltkammer wird im Zentrum eines großen Gamma-Szintillationsdetektors angeordnet. Die gepulste Neutronenquelle ist kollimiert und die Energie der Neutronen wird mit der Flugzeitmethode bestimmt. Da die Spaltkammer nur Spaltereignisse und der Szintillationsdetektor sowohl Spalt- als auch Einfangereignisse registriert, liefert die Koinzidenzzählrate zwischen beiden Detektoren den Beitrag der Spaltrate zur Gesamtzählrate im Szintillationstank. Bei dieser Messung ist eine hohe Neutronenempfindlichkeit der Spaltkammer notwendig. Daher verwendet man normalerweise Multiplattenspaltkammern, die mehrere Gramm  $^{235}\text{U}$  enthalten. Die Nachweiswahrscheinlichkeiten der Detektoren werden entweder mit thermischen Neutronen oder aus den Parametern mehrerer aufgelöster Resonanzen bestimmt. Die Schwierigkeiten dieser Methode liegen im kleinen Meßeffect /10/, denn das Verhältnis von Signal zu Untergrund ist  $\sim 1$ . Der Grund hierfür ist die geringe Reaktionsrate der Spaltkammer. Außerdem ist der Untergrund der gestreuten Neutronen von der Spaltkammer in den Szintillator, bzw. vom Szintillator in die Spaltkammer schwer zu bestimmen. Diese Tatsachen bestimmen wesentlich die Genauigkeit der Messergebnisse.

### b) Die Trennung über verzögerte Koinzidenzen

Bei dieser Methode wird ein großer Szintillationstank von etwa 1 m Durchmesser verwendet /8/, der zusätzlich mit einem Isotop, das einen hohen Absorptionsquerschnitt besitzt, vergiftet wird (Cadmium, Gadolinium). Die Empfindlichkeit dieses Detektors ist dann nahezu gleich eins. Die zu untersuchende spaltbare Probe wird in der Mitte des Szintillationstanks angeordnet. Bei Einfangereignissen in der Probe liefert der Detektor nur einen prompten Impuls. Bei Spaltereignissen entsteht nicht nur ein prompter Impuls, sondern auch ein

verzögerter Impuls, der von der Absorption der moderierten Spaltneutronen in der Vergiftung herrührt. Spaltereignisse lassen sich daher von Einfangereignissen über eine verzögerte Koinzidenzmessung trennen.

Die Lebensdauer eines Neutrons im Szintillationstank beträgt ungefähr  $10 \mu\text{s}$  und die Zeitdauer, für die das Gate der Koinzidenzeinheit nach dem ersten Impuls zur Registrierung des zweiten Impulses geöffnet bleibt, wird auf  $\sim 40 \mu\text{sec}$  eingestellt /4/. Die Lebensdauer und die Verzögerungszeit sind natürlich vom Tank abhängig.

Mit einer Wahrscheinlichkeit von  $\sim 18 \%$  wird nach der Spaltung kein Neutronenimpuls registriert, was zu Meßfehlern führen kann. Um einen großen Meßeffect zu bekommen, werden dicke Proben ( $\sim 4.5 \cdot 10^{21}$  Kerne/cm<sup>2</sup>) verwendet /4, 7/. Der hohe Untergrund entsteht durch Neutronen, die von den Kollimatoren, den Konstruktionsmaterialien und den Proben gestreut wurden. Der kleine Meßeffect (Verhältnis von Signal zu Untergrund ist auch  $\sim 1$ ) und die Schwierigkeiten bei der genauen Messung des Untergrunds sind die hauptsächlichsten Gründe für die Unsicherheiten dieser Meßmethode.

Die  $\alpha(E)$ -Werte von  $^{235}\text{U}$  wurden bisher fast ausschließlich mit den soeben beschriebenen Flugzeitspektrometern gewonnen. In Abb. 17 und Abb. 18 sind die Ergebnisse einiger Autoren /3 - 6, 9/ dargestellt, die später zusammen mit den hier gewonnenen Ergebnissen noch ausführlicher diskutiert werden.

Im allgemeinen ist der statistische Fehler groß, 20 % bei den Messungen von Ryabov und Kurov, 25 % bei den Messungen von de Saussure. Die Abweichungen zwischen verschiedenen Messungen sind ebenfalls groß (20 %  $\sim$  60 %). Diese erheblichen Abweichungen sind sicher zum Teil dadurch zu erklären, daß der Untergrund bei den Flugzeitmessungen hoch und schwer zu erfassen ist.

## 2. Prinzip des Bremszeitspektrometers

Die Bremsung von schnellen Neutronen durch elastische Stöße in Blei erzeugt eine schmale Energieverteilung, deren Mittelwert von der Bremszeit abhängig ist. Auf dieser Tatsache beruht das Prinzip des Bremszeitspektrometers /11/. Es besteht normalerweise aus einem Bleipile mit einer Kantenlänge von 1 bis 2 m, in dessen Mitte sich eine gepulste Neutronenquelle befindet. Diese liefert periodisch 14 MeV Neutronen mit Hilfe der  $T(d,n) \text{ } ^4\text{He}$ -Reaktion. Das hohe Atomgewicht, der konstante Streuquerschnitt und der kleine Absorptionsquerschnitt machen insbesondere Blei für die Verwendung in einem Bremszeitspektrometer geeignet. Im einzelnen spielen sich nach dem Neutronenimpuls folgende Vorgänge im Bleipile ab. Durch anfängliche inelastische Stöße werden die 14 MeV Quellneutronen sehr schnell ( $\sim 300$  nsec) auf Energien unterhalb 0.57 MeV (niedrigstes Anregungsniveau von Blei) abgebremst. Danach setzt der rein elastische Streuprozeß ein. Nach Beendigung des inelastischen Abbremsvorgangs haben die Neutronen eine breite Energieverteilung. Bei der sich anschließenden nur elastischen Abbremsung tritt zunächst eine Fokussierung bezüglich der Energie ein.

Mit dem Neutronenfeld des Bleipiles und einem Vielkanalanalysator der die zeitabhängige Neutronenreaktionsrate/11-25/ registriert, kann man energieabhängige Wirkungsquerschnitte, Selbstabschirmungsfaktoren, Resonanzintegrale und Resonanzparameter bestimmen.

## 2.1 Beziehung zwischen mittlerer Neutronenenergie und Abbremszeit

Für Moderatoren großer Massenzahl ( $A \gg 1$ ) und mit vernachlässigbarem Absorptionsquerschnitt kann man unter der Annahme, daß der mittlere logarithmische Energieverlust pro Stoß  $\xi$  und der Streuquerschnitt des Moderators unabhängig von der Neutronenenergie sind, eine Beziehung zwischen der mittleren Neutronenenergie und der Abbremszeit herleiten.

Für die elastische Streuung ist die Zahl der Stöße ( $dn$ ) in der Zeit  $dt$  für ein Neutron mit der Geschwindigkeit  $\bar{v}(t)$

$$dn = \Sigma_s \cdot ds = \frac{ds}{\lambda_s} = \frac{\bar{v}(t) \cdot dt}{\lambda_s} \quad (2.1.1)$$

Bei jedem Stoß nimmt die Lethargie

$$\bar{u}(t) = \ln \frac{E_0}{\bar{E}(t)} \quad (2.1.2)$$

um den Faktor  $\xi$  zu. Die gesamte Zunahme der Lethargie nach  $dn$  Stößen ist

$$d\bar{u}(t) = -d(\ln \bar{E}(t)) = \xi dn = \frac{\xi \bar{v}(t) \cdot dt}{\lambda_s}, \quad (2.1.3)$$

$$\text{und } \bar{E}(t) = \frac{1}{2} m_N \bar{v}(t)^2.$$

Man erhält

$$\frac{\xi \bar{v}(t) dt}{\lambda_s} = - \frac{2 d\bar{v}(t)}{\bar{v}(t)} \quad (2.1.4)$$

mit  $\xi = \ln \frac{\bar{E}_1(t)}{\bar{E}_2(t)} \approx \frac{2}{A + \frac{2}{3}} \approx \frac{2}{A}$  für  $A \gg 1$

Durch Integration

$$\int_{t_0}^{t_0+t} dt = -A\lambda_s \int_{v_0}^{\bar{v}(t)} \frac{1}{\bar{v}(t)^2} d\bar{v}(t)$$

bekommt man

$$t = A\lambda_s \left( \frac{1}{\bar{v}(t)} - \frac{1}{v_0} \right) \quad (2.1.5)$$

oder  $\bar{E}(t) = \frac{1}{2} m_N A^2 \lambda_s^2 \left( \frac{1}{t + \frac{\lambda_s}{v_0}} \right)^2$

$$= \frac{C}{(t+t_0)^2} \quad (2.1.6)$$

mit

$$C = \frac{1}{2} m_N A^2 \lambda_s^2 = 167 \text{ [keV} \cdot \mu\text{sec}^2]$$

$$t_0 = \frac{A\lambda_s}{v_0} = 0.265 \text{ [}\mu\text{sec]}.$$

Dabei sind:

- $m_N$  = Neutronenmasse
- $A$  = Atomgewicht des Moderators (Blei)
- $\lambda_s$  = mittlere Streuweglänge im Moderator  
= 2.71 cm für Blei
- $v_0$  = mittlere Anfangsgeschwindigkeit der Neutronen  
bei Beginn der rein elastischen Abbremsung
- $\Sigma_s$  = makroskopischer Streuquerschnitt des Moderators

Die Konstante C wurde experimentell bestimmt. Dazu wurden Substanzen mit bekannten Einfangresonanzen benutzt. Die Ergebnisse sind in Abb.1 dargestellt. Die Konstante  $t_0$  hängt von der Dauer des inelastischen Bremsvorgangs ab. Ihre Bestimmung ist mit Hilfe von Monte-Carlo-Rechnungen /21/ möglich.

## 2.2 Neutronenfeld im Bleipile

Der Neutronenfluß  $\phi(\vec{r}, t, E)$  im Bleipile läßt sich durch die instationäre energieabhängige Transportgleichung beschreiben. Eine analytische Lösung dieser Gleichung ist nur möglich, wenn der Fluß in Ort, Zeit und Energie separiert werden kann:

$$\phi(\vec{r}, t, E) = \varphi(\vec{r}) \varphi(t) \varphi(E) \quad (2.2.1)$$

Hier ist  $\varphi(r)$  = ortsabhängige Verteilung der Neutronen  
 $\varphi(t)$  = zeitliche Abnahme des Neutronenflusses  
 $\varphi(E)$  = Energieverteilung der Neutronen zu einem bestimmten Zeitpunkt.

Die ortsabhängige Verteilung der Neutronen  $\varphi(r)$  bekommt man aus der Lösung der elementaren Diffusionsgleichung.



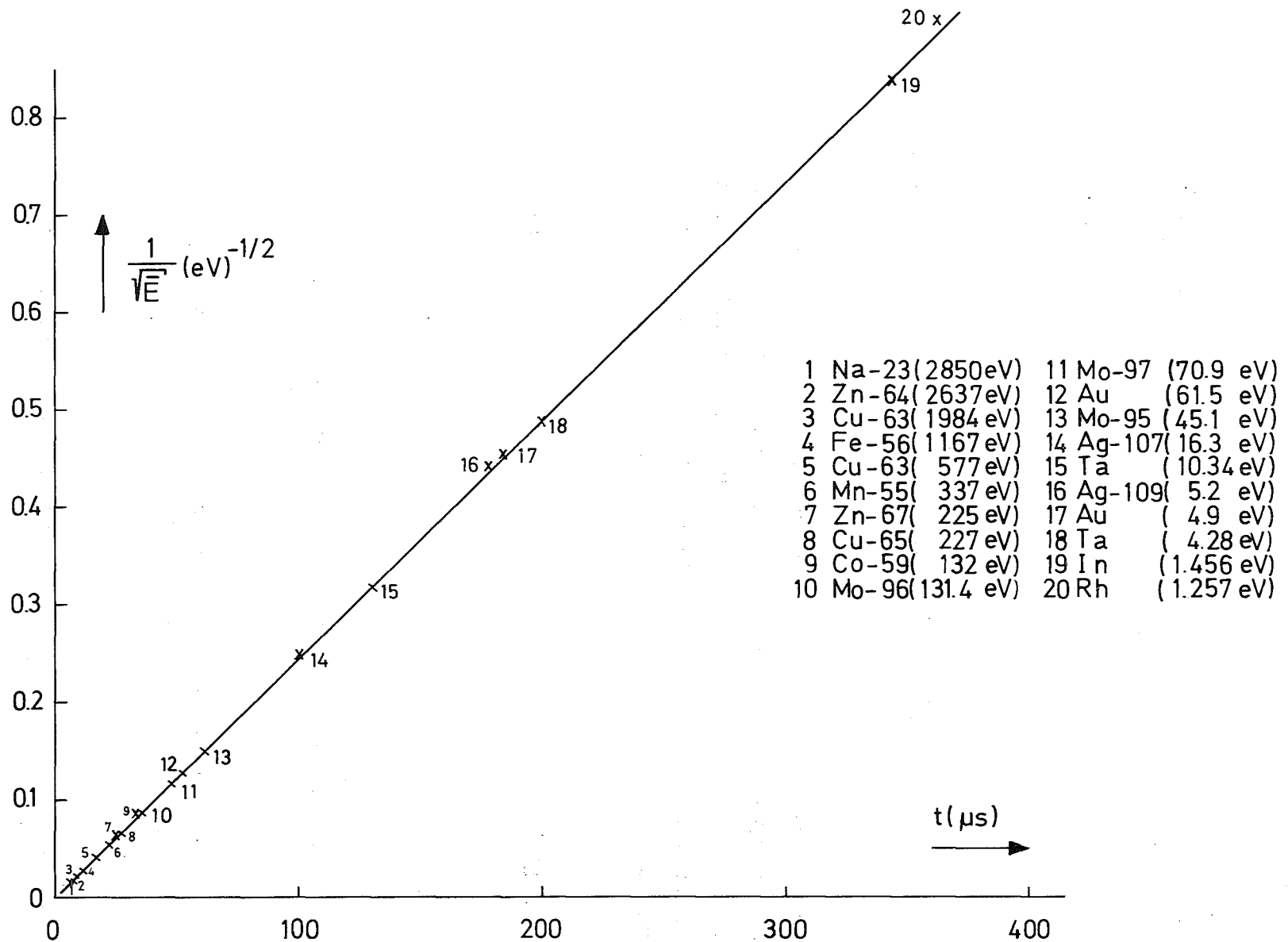


Abb. 1 Gemessener Zusammenhang zwischen Bremszeit  $t$  und mittlerer Neutronenenergie  $\bar{E}$  im Bleipile

Für einen Bleipile mit den effektiven Kantenlängen  $2a \times 2b \times 2c$  lautet diese Lösung /26/:

$$\varphi(\vec{r}) = \sum_{l,m,n} \psi_{l,m,n} \cos \frac{\pi(2l+1)x}{2a} \cos \frac{\pi(2m+1)y}{2b} \cos \frac{\pi(2n+1)z}{2c} \quad (2.2.3)$$

und für den Grundmode ( $l=m=n=0$ ):

$$\varphi(\vec{r}) = \phi_0 \cos \frac{\pi x}{2a} \cos \frac{\pi y}{2b} \cos \frac{\pi z}{2c} \quad (2.2.3)$$

Die zeitliche Abnahme des Neutronenflusses  $\varphi(t)$  wird durch Absorption und Leckage verursacht. Einen Ausdruck für  $\varphi(t)$  erhält man durch die Lösung der zeitabhängigen Diffusionsgleichung unter Verwendung der Fermi-Alter-Gleichung für eine punktförmige isotope Quelle /26/:

$$\varphi(t) = \left( \frac{t-t_0}{t_0} \right)^{-(\alpha+1)} \cdot e^{-\frac{t}{T}} \quad (2.2.4)$$

dabei sind

$$\alpha = \frac{A \lambda_s^2 B_0^2}{3} = 0.36 \quad \text{für einen kubischen Pile mit } 2m \text{ Kantenlänge}$$

$$T = \frac{1}{\Sigma_{\text{abs}}^{\text{Pb}} \cdot v} = \text{Lebensdauer der Neutronen im unendlichen Moderator} \\ = 810 \mu\text{s im Blei}$$

$$B_0^2 = \text{geometrisches Buckling des Bleipiles für den Grundmode}$$

$$= \frac{\pi^2}{4} \left( \frac{1}{a^2} + \frac{1}{b^2} + \frac{1}{c^2} \right) \text{ mit } 2a \times 2b \times 2c -$$

Abmessungen des Quaders.

Die Abhängigkeit der Neutronendichte von der Bremszeit wurde mit Hilfe eines  $1/v$ -Detektors ( $\text{BF}_3$ -Zähler) gemessen. Die Ergebnisse für den Bleiquader sind in Abb.2 dargestellt.

### 2.3 Auflösungsvermögen

Das energetische Auflösungsvermögen des Bremszeitspektrometers wird durch die Art und Weise des Moderierungsprozesses bestimmt. Solange die Energie der Neutronen größer als die des niedrigsten Anregungsniveaus des Moderators ist, können die Neutronen inelastische Stöße erfahren. Die inelastischen Stöße ergeben eine sehr breite Energieverteilung, welche bei der sich anschließenden elastischen Streuung zunächst eine Fokussierung erfährt. Diese Fokussierung kann man folgendermaßen verstehen. Ein Neutron mit der Geschwindigkeit  $v$  macht pro Zeiteinheit  $\frac{v}{\lambda_s}$  Stöße. Die Zahl der Stöße ist also proportional zur Geschwindigkeit wenn  $\lambda_s = \text{const.}$  ist. Die mittlere Geschwindigkeitsänderung in der Zeiteinheit ist dann proportional der Geschwindigkeit. Im Zeitpunkt  $t$  mögen die Neutronen eine mittlere Geschwindigkeit  $\bar{v}(t)$  haben. Für Neutronen, deren Geschwindigkeit größer bzw. kleiner als  $\bar{v}(t)$  ist, ist die relative Geschwindigkeitsänderung pro Zeiteinheit größer bzw. kleiner als die der Neutronen mit der mittleren Geschwindigkeit  $\bar{v}(t)$ . Die Neutronen werden daher nach einiger Zeit in den Bereich der mittleren Geschwindigkeit fokussiert.

Andererseits verbreitert sich beim Bremsprozeß die Energieverteilung der Neutronen, da es sich um einen stochastischen Prozeß handelt, so daß sich schließlich eine asymptotische Energieverteilung einstellt, die durch eine Gaußfunktion beschrieben werden kann /27/:

$$\varphi\left(\frac{E}{\bar{E}}\right) = \sqrt{\frac{3A}{16\pi}} \cdot e^{-\frac{3A}{16} \left(\frac{E}{\bar{E}} - 1\right)^2} \quad (2.3.1)$$

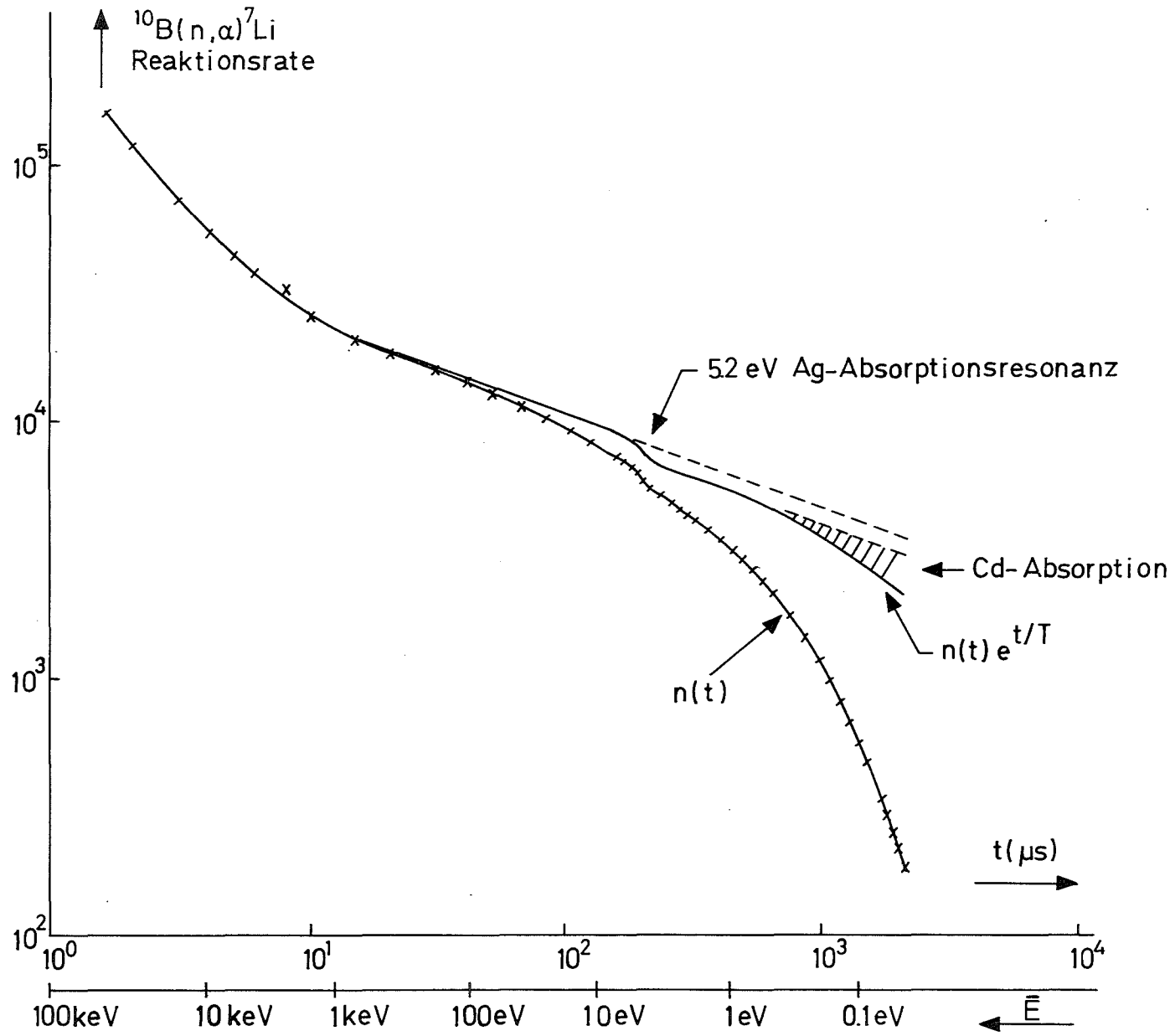


Abb. 2 Gemessene Neutronendichte  $n(t)$  im Bleipile und Neutronendichte  $n(t)e^{t/T}$  nach Korrektur der Absorption in Blei mit  $T = 810 \mu\text{s}$  in Abhängigkeit von der Bremszeit  $t$

Für Energien unterhalb etwa 10 eV verbreitert sich die Energieverteilung infolge der thermischen Bewegung und der chemischen Bindung der Moderatoratome /28/.

Für das gesamte Auflösungsvermögen des Bremszeitspektrometers erhält man dann den Ausdruck /21/:

$$\frac{\delta E}{\bar{E}(t)} = \sqrt{\frac{\delta E_0}{\bar{E}_0} \cdot \frac{\bar{E}(t)}{\bar{E}_0} + \left(\frac{\delta E}{\bar{E}(t)}\right)_\infty^2 \cdot \left(1 - \frac{\bar{E}(t)}{\bar{E}_0}\right) + 5.0 \frac{kT}{\bar{E}(t)}} \quad (2.3.2)$$

dabei sind  $\bar{E}_0$  = mittlere Neutronenenergie nach Beendigung der inelastischen Stöße (eV)

$$\left(\frac{\delta E}{\bar{E}(t)}\right)_\infty^2 = \frac{64}{3A} \cdot \ln 2.$$

Durch die Ungenauigkeit bei der Zeitbestimmung ist jedoch das tatsächliche Auflösungsvermögen etwas größer. Die Zeitungenauigkeit

$$\Delta t = \sqrt{(\Delta t_1)^2 + (\Delta t_2)^2}$$

führt zu einer Verbreiterung der theoretischen Energieverteilung zum Zeitpunkt t.  $\Delta t_1$  ist die Breite des erzeugten Quellneutronenpulses und  $\Delta t_2$  die Kanalbreite des Zeitanalysators. Diese Verbreiterung der Energieverteilung läßt sich mit Hilfe der Gleichung (2.1.5) die die Beziehung zwischen der Neutronenenergie und der Abbremszeit angibt, berechnen. Für den Fall,  $\Delta t_1 = 0.5 \mu s$  und  $\Delta t_2 = 0.25 \mu s$ , ist der Anteil der Zeitungenauigkeit an der gesamten Energieauflösung ~10% bei 200 eV und ~30% bei 20 keV /12/.

Die gesamte Energieauflösung  $\frac{\delta E}{\bar{E}(t)}$  in Abhängigkeit von  $\bar{E}(t)$  sowie die gemessenen Halbwertsbreiten einiger Einfangresonanzen als Funktion der Resonanzenergie sind in Abb.3 dargestellt. Die Energieauflösung des Bleipiles von 1 keV bis 100 keV wurde mit Hilfe einer Monte Carlo-Rechnung gewonnen /21/. Im Meßbereich  $\bar{E}(t)=200$  eV  $\sim 20$  keV. liegt die Energieauflösung  $\frac{\delta E}{\bar{E}(t)}$  zwischen 25%  $\sim 50\%$ .

Der nutzbare Energiebereich des Bremszeitspektrometers wird daher durch das Auflösungsvermögen begrenzt. Die untere Grenze ist  $\sim 1$  eV und die obere Grenze  $\sim 50$  keV /11/.

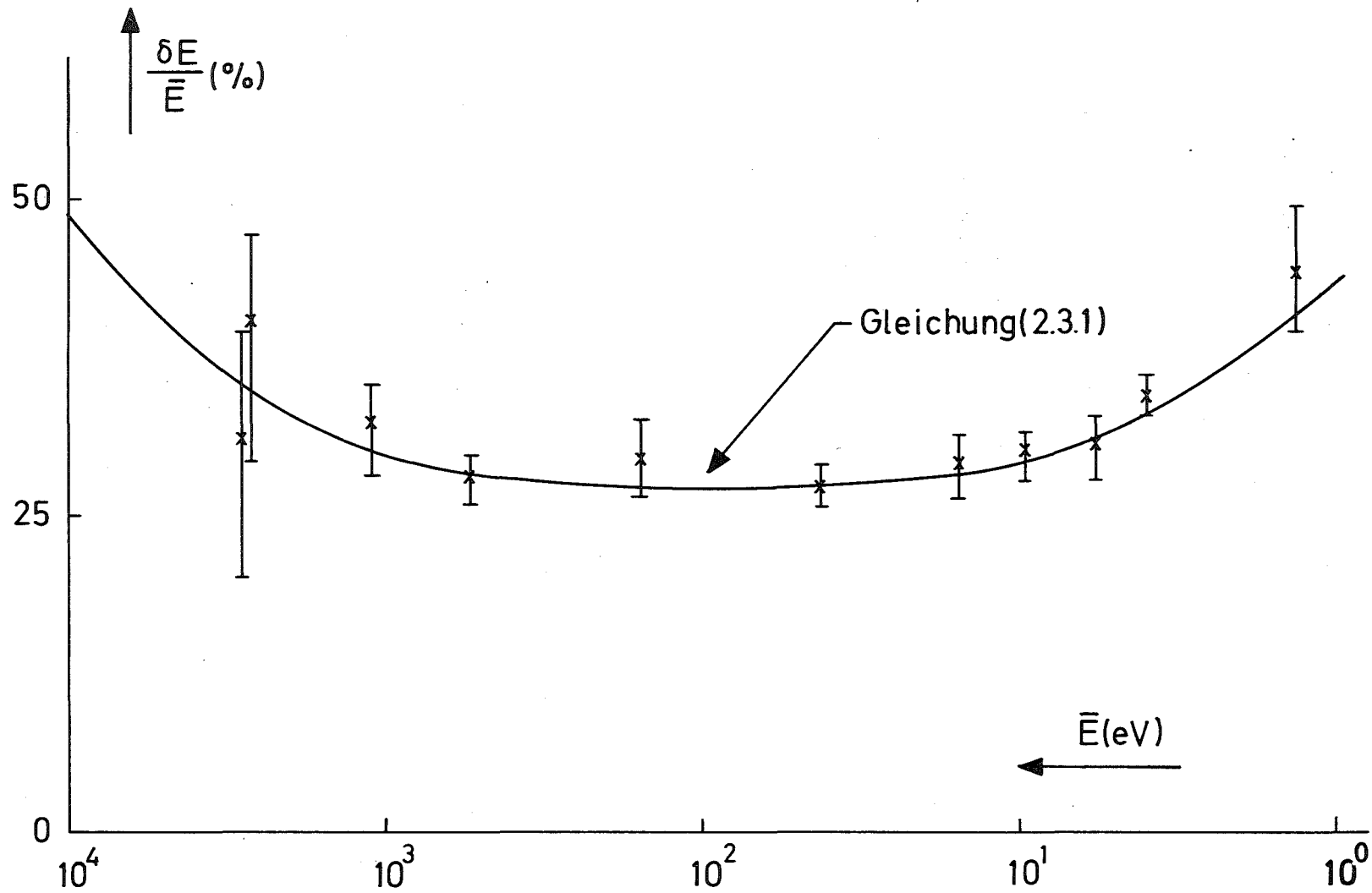


Abb. 3 Gemessene Halbwertsbreite des Neutronenspektrums in Abhängigkeit von der mittleren Neutronenenergie

### 3. Meßmethode

Außer den im Abschnitt 1 beschriebenen Methoden eignet sich auch das Bremszeitspektrometer für die Messung von Einfangsquerschnitten in Spaltmaterialien. Diese Methode wurde zuerst von Bergman et al. für die Messung der  $\alpha$ -Werte von Pu-239 angewendet /29/.

Der wesentliche Punkt bei der  $\alpha$ -Messung ist die Unterscheidung von Einfang- und Spaltereignissen, denn beide Prozesse liefern Gammaquanten. Zur Bestimmung der Summe der Spalt- und Einfangraten wurde ein Gamma-Proportionalzählrohr verwendet, das von den zu untersuchenden zylindrischen Proben umschlossen war. Die Empfindlichkeit des Proportionalzählrohrs für den Nachweis von  $\gamma$ -Quanten ist ihrer Energie proportional, d.h.

$$\epsilon = \text{const} \cdot E_{\gamma} \quad (3.1)$$

dabei sind

$\epsilon$  = Empfindlichkeit des Detektors

$E_{\gamma}$  = Energie der  $\gamma$ -Quanten.

Bei Einfangereignissen ist  $E_{\gamma}$  die totale prompte  $\gamma$ -Energie,

$$\begin{aligned} [E_{\gamma}]_{\text{Einfang}} &= \sum_{i=1}^M \sum_{i>j} N_{ij} h(\nu_i - \nu_j) \\ &\approx B_n, \end{aligned} \quad (3.2)$$

dabei sind  $N_{ij}$  = Anteil des Übergangs ( $i \rightarrow j$ ) nach einem Einfangereignis

$M$  = Anzahl der angeregten Niveaus des Compoundkerns

$h$  = Plancksche Konstante

$\nu_i, \nu_j$  = Frequenzen der entsprechenden angeregten Niveaus  $i$  und  $j$

$B_n$  = Neutronenbindungsenergie des Compoundkerns.



Im Meßbereich ist die kinetische Energie des einfallenden Neutrons im Vergleich zur Neutronenbindungsenergie des Compoundkerns vernachlässigbar. Deshalb erhält man

$$\epsilon_{\bar{c}} = \text{const} \cdot B_n. \quad (3.3)$$

D.h. die Nachweiswahrscheinlichkeit ist für Einfangereignisse der Neutronenbindungsenergie proportional und nicht vom Zerfallschema des Compoundkerns abhängig. Die Nachweiswahrscheinlichkeit für Spaltereignisse ist

$$\epsilon_f = \text{const} \cdot E_f. \quad (3.4)$$

Dabei ist  $E_f$  = mittlere prompte Gammaenergie pro Spaltung.

Die zur Zeit  $t$  nach dem Neutronenimpuls im Zeitanalysator registrierte  $\gamma$ -Zählrate ist für dünne Proben unter der Annahme, daß  $B_n$  und  $E_f$  unabhängig von der Neutronenenergie sind, gegeben durch

$$Z_\gamma(t) = N \cdot \Delta t \int [\epsilon_c \sigma_c(E) + \epsilon_f \sigma_f(E)] \phi(E,t) dE + \text{Untergrund}. \quad (3.5)$$

Unter der Voraussetzung, daß  $\int \sigma(E) \phi(E,t) dE$  durch  $\sigma(\bar{E}(t)) \cdot \phi(t)$  ersetzt werden kann, was eine gute Näherung darstellt wie Klunker in /21/ gezeigt hat, erhält man

$$Z_\gamma(t) = k_\gamma [\sigma_c(\bar{E}(t)) + \beta \sigma_f(\bar{E}(t))] \phi(t) + \text{Untergrund}, \quad (3.6)$$

dabei sind  $N$  = gesamte Kernzahl der untersuchten Probe

$\Delta t$  = Kanalbreite des Zeitanalysators

$\beta = \frac{\epsilon_f}{\epsilon_c}$  ist das Verhältnis der Nachweissensitivitäten für ein Spaltereignis und ein Einfangereignis.

Aufgrund der Eigenschaften des  $\gamma$ -Zählrohrs ist  $\beta$  auch gleich  $E_f/B_n$ .

Die Spaltrate allein wird mit Hilfe einer Spaltkammer bestimmt:

$$Z_f(t) = k_f \sigma_f (\bar{E}(t)) \phi(t) \quad (3.7)$$

Aus der mit dem Untergrund korrigierten Gleichung (3.6) erhält man zusammen mit (3.7):

$$\alpha(\bar{E}(t)) = \frac{k_f}{k_\gamma} \cdot \frac{Z_\gamma(t)}{Z_f(t)} - \beta \quad (3.8)$$

Der Normierungsfaktor  $k_f/k_\gamma$  wird mit Hilfe der Eichmessung in einem thermischen Neutronenfluß unter Verwendung der bekannten thermischen Spalt- und Einfangquerschnitte bestimmt. Dabei wird angenommen, daß  $k_f/k_\gamma$  bei der thermischen Eichmessung und bei der Messung im Bremszeitspektrometer gleich ist.

$$Z_\gamma^{th} = k_\gamma (\sigma_c^{th} + \beta \sigma_f^{th}) \phi^{th} + \text{Untergrund} \quad (3.9)$$

$$Z_f^{th} = k_f \sigma_f^{th} \phi^{th} \quad (3.10)$$

Nimmt man an, daß auch  $E_f$  unbekannt ist, so ist eine weitere Messung mit einer nicht spaltbaren Standardprobe notwendig.

$$Z_{\gamma, st}^{th} = k_\gamma^{st} \sigma_{c, st}^{th} \phi^{th} + \text{Untergrund} \quad (3.11)$$

Dabei sind  $\sigma_c^{th}$ ,  $\sigma_{c, st}^{th}$ ,  $\sigma_f^{th}$  die thermischen Einfang- und Spaltquerschnitte.  $\phi^{th}$  ist der thermische Neutronenfluß.

Aufgrund der Eigenschaften des  $\gamma$ -Zählrohrs erhält man

$$\frac{k_\gamma}{k_\gamma^{st}} = \frac{n_x M_x \epsilon_c}{n_{st} M_{st} \epsilon_c^{st}} = \frac{n_x M_x B_n}{n_{st} M_{st} B_n^{st}} \quad (3.12)$$

dabei sind  $n_x$  = effektive Anzahl von Kernen in der Probe  
 $n_{st}$  = effektive Anzahl von Kernen in der Standardprobe  
 $M_x, M_{st}$  = Monitorzahl.

Aus den Gleichungen (3.9), (3.10) und (3.11) erhält man nach der Untergrundkorrektur:

$$\beta = \frac{k_{\gamma}^{st}}{k_{\gamma}} \frac{\sigma_{c,st}^{th}}{\sigma_f^{th}} \frac{z_{\gamma}^{th}}{z_{\gamma,st}^{th}} - \alpha^{th} \quad (3.13)$$

$$\frac{k_f}{k_{\gamma}} = (\alpha^{th} + \beta) \frac{z_f^{th}}{z_{\gamma}^{th}}, \quad (3.14)$$

dabei ist  $\alpha^{th}$  = Verhältnis der thermischen Neutronenquerschnitte für Einfang und Spaltung.

Das hier beschriebene Meßverfahren besteht demnach aus zwei Teilen: 1.) aus einer Eichmessung zur Bestimmung der Eichfaktoren  $k_f/k_{\gamma}$  und  $\beta$  mit Hilfe von bekannten thermischen Wirkungsquerschnitten und 2.) aus der eigentlichen  $\alpha(E)$ -Messung.

## 4. Aufbau und Durchführung der Experimente

### 4.1 Eigenschaften des $\gamma$ -Proportionalzählrohrs

Das verwendete zylindrische Gamma-Proportionalzählrohr wurde im INR gebaut und bestand aus  $AlMg_3$  mit einer Dicke von 5.5 mm und enthielt eine Anode aus Wolfram von 50  $\mu$  Durchmesser. Das Zählrohr wurde mit 1.5 bar Argon (reinst) und 0.02 bar Kohlendioxyd gefüllt. Es hatte einen Außendurchmesser von 27 mm und eine Länge von 370 mm. Die höchste Betriebsspannung betrug 2500 Volt. Das mit einer Co-60-Gammaquelle gemessene Impulshöhenspektrum ist in Abb. 4 dargestellt. Es ändert sich nicht mit der  $\gamma$ -Energie. Zur Eliminierung des Rauschens wurde die Schwelle, wie in Abb. 4 angedeutet, angeordnet.

Bei Anordnung einer  $\gamma$ -Quelle an der Oberfläche des Zählrohrs beträgt die axiale Ausdehnung des Bereichs konstanter Empfindlichkeit mindestens 200 mm. Abb. 5 zeigt die Änderung des axialen Verlaufs der Empfindlichkeit für wachsende Abstände zwischen Gamma-Quelle und Zählrohrachse.

Die zu messende Probe wurde innerhalb des Bereichs konstanter Empfindlichkeit direkt an der Oberfläche des Zählrohrs angeordnet.

Ein Proportionalzählrohr mit der effektiven Wandstärke  $d_{\text{eff}} \geq R_e$  ( $R_e$  = Reichweite der energiereichsten Sekundärelektronen) hat eine Empfindlichkeit, die proportional zur  $\gamma$ -Energie /30-32/ ist. Diese Proportionalität geht im Fall  $d_{\text{eff}} < R_e$  verloren. Falls  $d_{\text{eff}} < R_e$  ist, bewirkt eine das Zählrohr umgebende Probe außerdem eine Erhöhung der Zählrohrempfindlichkeit, da Sekundärelektronen aus der Probe in das Zählrohr gelangen können. Dies muß unbedingt vermieden werden, da sonst der gemessene  $\gamma$ -Untergrund von der Probendicke abhängig ist.

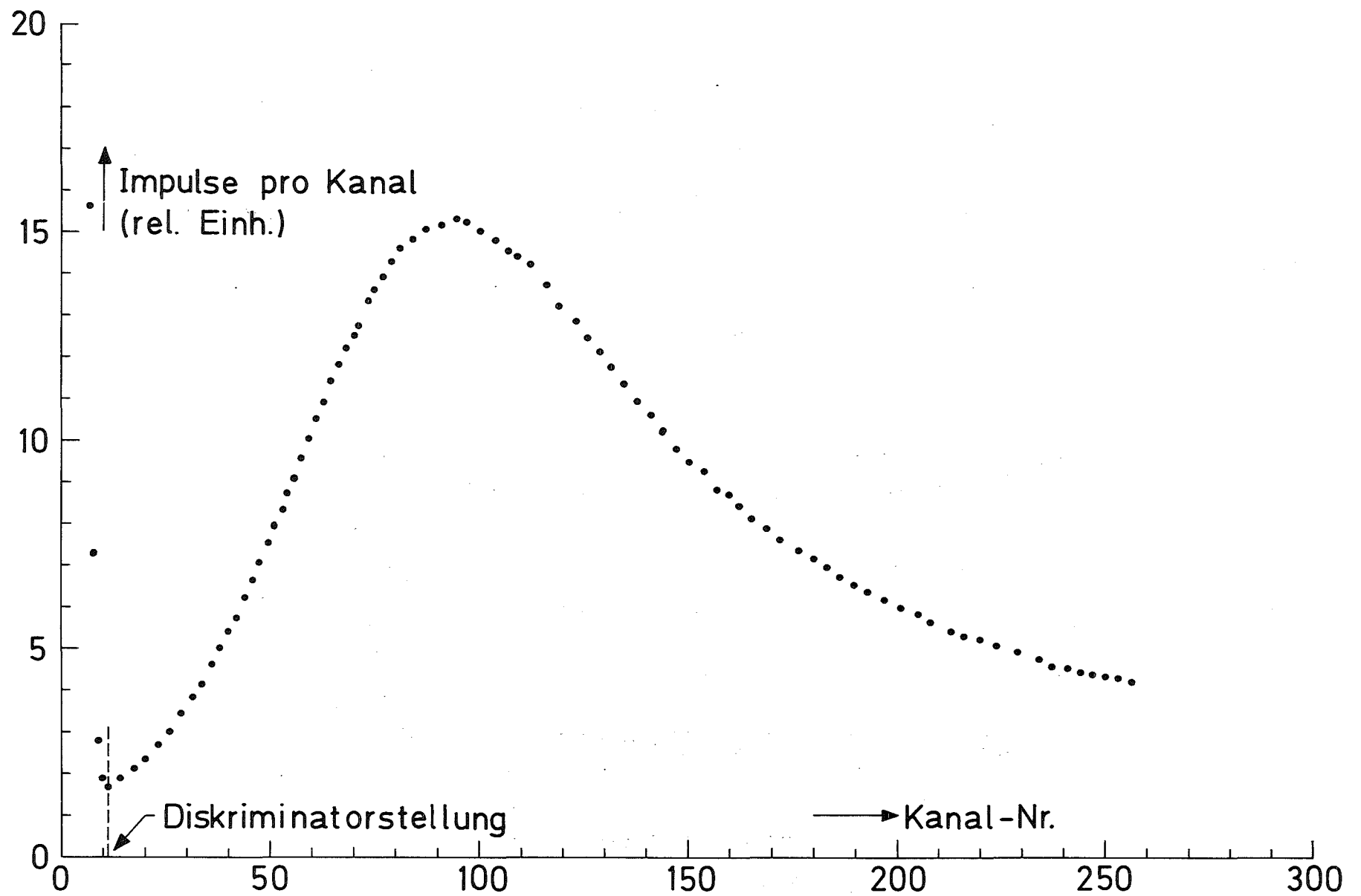


Abb. 4 Impulshöhenspektrum des  $\gamma$ -Zählrohrs

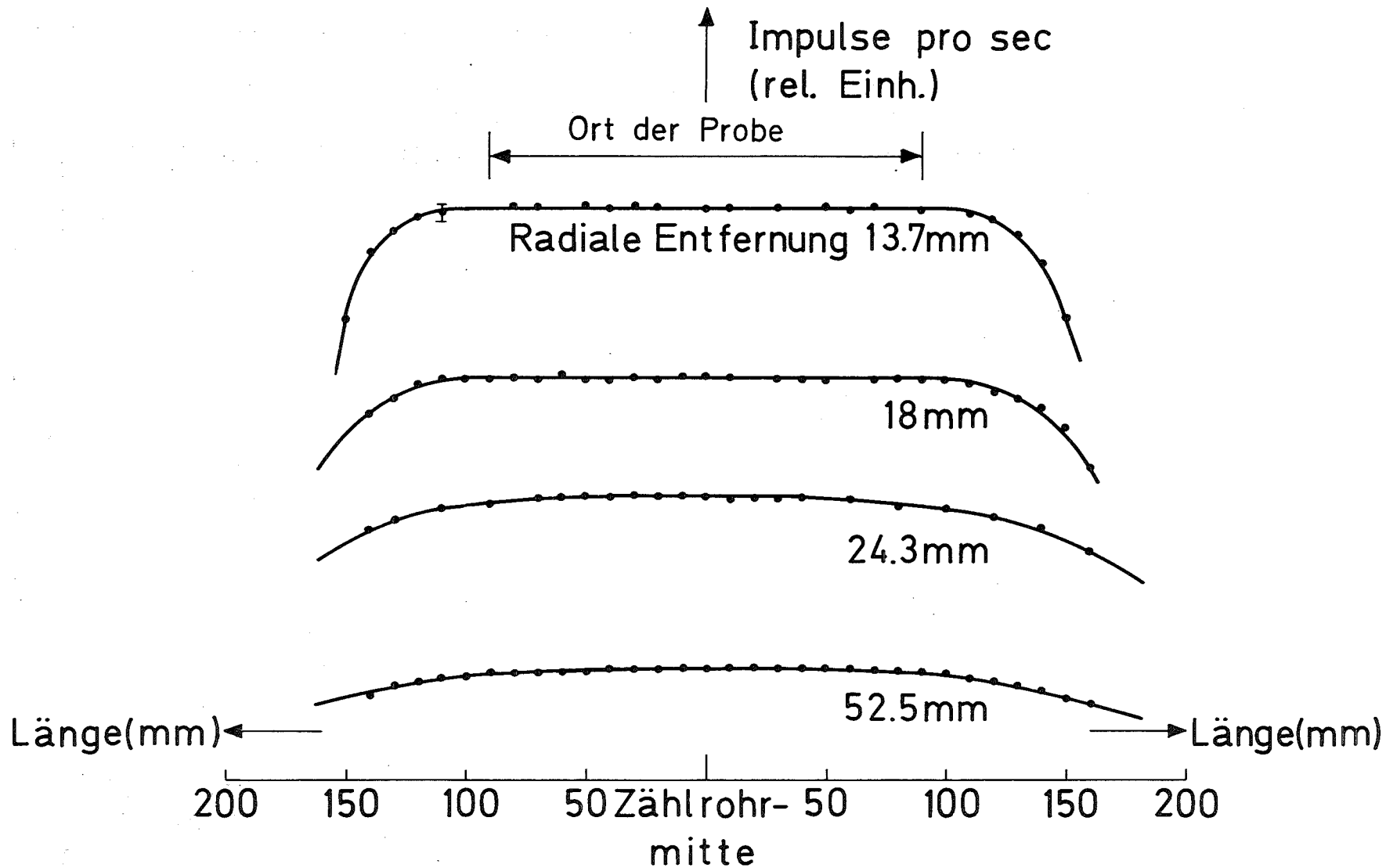


Abb. 5 Gemessene axiale Empfindlichkeiten des  $\gamma$ -Zählrohrs für verschiedene radiale Positionen der  $\gamma$ -Quelle

Andererseits sollte die Wandstärke auch nicht unnötig groß sein, da sonst Neutronenstreuungen in der Zählrohrwand das Energiespektrum verändern können. Außerdem wird sich die Empfindlichkeit des Zählrohrs mit der unnötigen Zunahme der Wandstärke vermindern.

Die geeignete Wandstärke des  $\gamma$ -Zählrohrs läßt sich aus der Berechnung der Reichweite der energiereichsten zu erwartenden Elektronen gewinnen.

Die Proportionalität der Empfindlichkeit zur Energie der einfallenden  $\gamma$ -Quanten wurde experimentell nachgeprüft. Dazu wurde ein geeichter Satz von  $\gamma$ -Quellen des "Radiochemical Centre, Amersham, England" verwendet. Die Quellstärken des Satzes waren am 1.11.1973 bestimmt worden. Außerdem wurde eine  $^{24}\text{Na}$   $\gamma$ -Quelle durch Bestrahlung von  $^{23}\text{Na}$  in der thermischen Säule des FR2 hergestellt. Ihre Quellstärke wurde mit einem Ge-Detektor bestimmt, dessen absolute Empfindlichkeit zuvor mit den Standardquellen und unter Verwendung einer gerechneten Empfindlichkeitskurve /33/ bestimmt worden war. Dies ist in Abb. 6 dargestellt. Die an die gemessenen Werte angepaßte gerechnete Kurve wird dazu benutzt, um die Empfindlichkeit des Ge-Detektors bei der  $^{24}\text{Na}$ -Linie zu bestimmen. Die Abhängigkeit der Empfindlichkeit von der  $\gamma$ -Energie ist in Tab. 1 und Abb. 7 dargestellt.

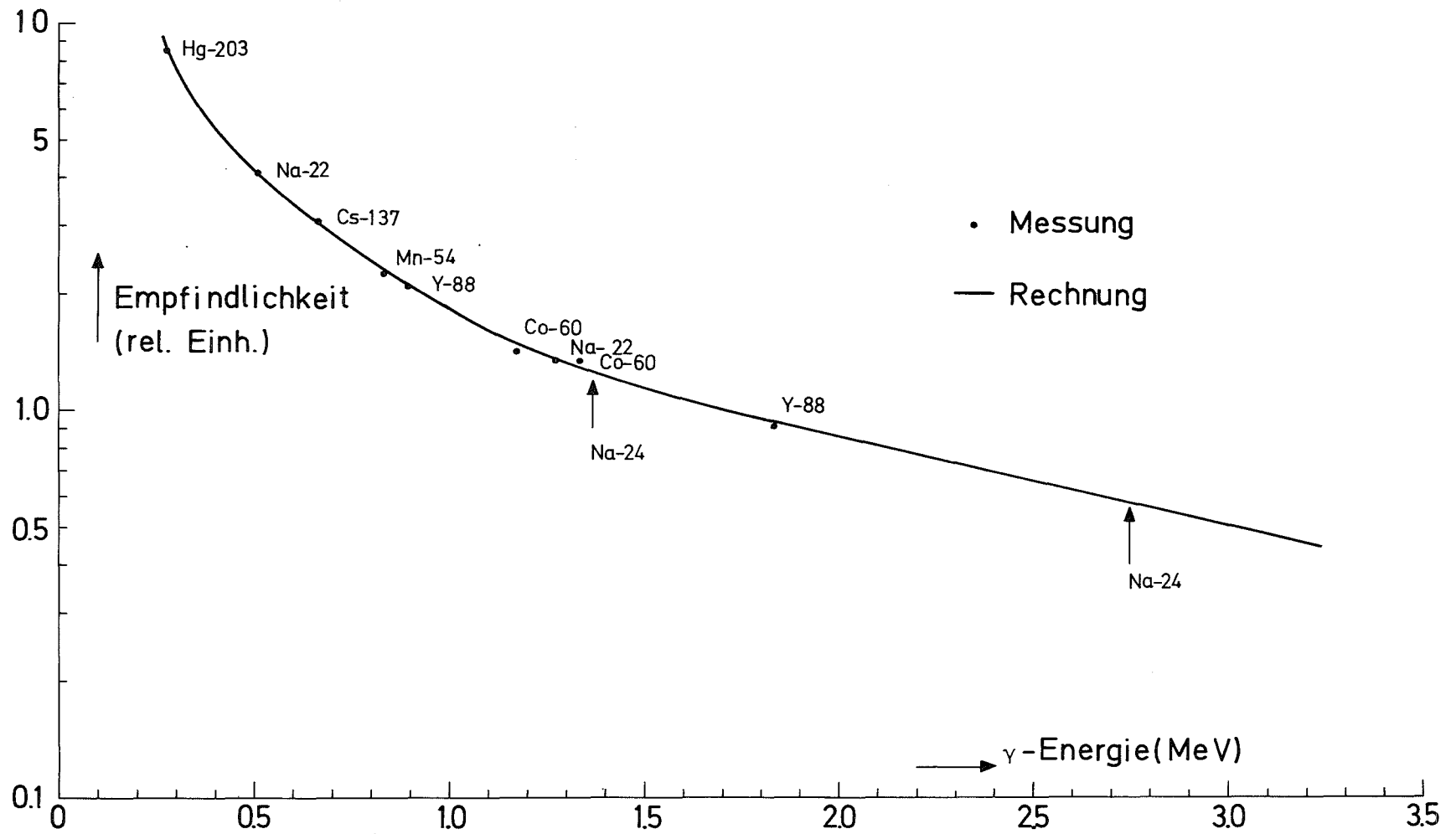


Abb. 6 Bestimmung der Empfindlichkeit des Ge(Li)-Detektors für die  $\text{Na}^{24}$ -Quelle



Tabelle 1 Empfindlichkeit des  $\gamma$ -Zählrohrs in Abhängigkeit von der Energie

$\gamma$ -Quelle	Quellstärke Q( $\mu$ c)	Halbwertszeit $T_{1/2}$	$\gamma$ -Energien $E_{\gamma i}$ (keV)	Anteil der Gammas pro Zerfall $h_i$ (%)	*Effektive $\gamma$ -Energie $E_{\gamma \text{eff}}$ (keV)	$\Sigma h_i$ (%)	Q·E <sub><math>\gamma \text{eff}</math></sub> · $\Sigma h_i$ (MeV/sec)	**Gemessene Zählrate (1/sec)	$\epsilon_{\gamma}/E_{\gamma \text{eff}}$ (1/MeV)
Am-241	12.32	485.1 y	26.36 59.57	2.5 35.9	57.41	38.4	$1.01 \cdot 10^4$	$4.46 \cdot 10$	$4.43 \cdot 10^{-3}$
Co-57	7.86	271.6 d	14.4 122.0 136.4	10.7 85.3 8.4	112.1	104.4	$3.40 \cdot 10^4$	$4.49 \cdot 10$	$1.32 \cdot 10^{-3}$
Hg-203	5.4	46.57 d	279.1	81.55	279.1	81.55	$4.55 \cdot 10^4$	$4.05 \cdot 10$	$8.90 \cdot 10^{-4}$
Na-22	9.71	2.603 y	511.0( $\beta^+$ ) 1274.6	179.7 99.94	784.0	279.6	$7.88 \cdot 10^5$	$1.00 \cdot 10^3$	$1.27 \cdot 10^{-3}$
Cs-137	10.76	29.82 y	661.6	84.6	661.6	84.6	$2.23 \cdot 10^5$	$2.75 \cdot 10^2$	$1.24 \cdot 10^{-3}$
Mn-54	8.09	313 d	835.0	100	835.0	100	$2.50 \cdot 10^5$	$3.29 \cdot 10^2$	$1.32 \cdot 10^{-3}$
Co-60	12.06	5.263 y	1173.3 1333.0	100 100	1253.1	200	$1.12 \cdot 10^6$	$1.65 \cdot 10^3$	$1.48 \cdot 10^{-3} \pm 3\%$
Y-88	6.35	106.6 d	897.5 1836.2 2734,1	92 100 0.63	1390.6	192.6	$6.29 \cdot 10^5$	$9.23 \cdot 10^2$	$1.47 \cdot 10^{-3}$
Na-24	1.46	15 h	1368.0 2750.0	100 100	2059.0	200	$2.22 \cdot 10^5$	$3.44 \cdot 10^2$	$1.55 \cdot 10^{-3} \pm 8\%$

$$*E_{\gamma \text{eff}} = \frac{\sum_i h_i E_{\gamma i}}{\sum_i h_i}$$

\*\*Entfernung der Quelle von der Zählrohrachse = 18.2 mm

Au		6513							$1.38 \cdot 10^{-3} \pm 6\%$
Ag		6934							$1.50 \cdot 10^{-3} \pm 6\%$

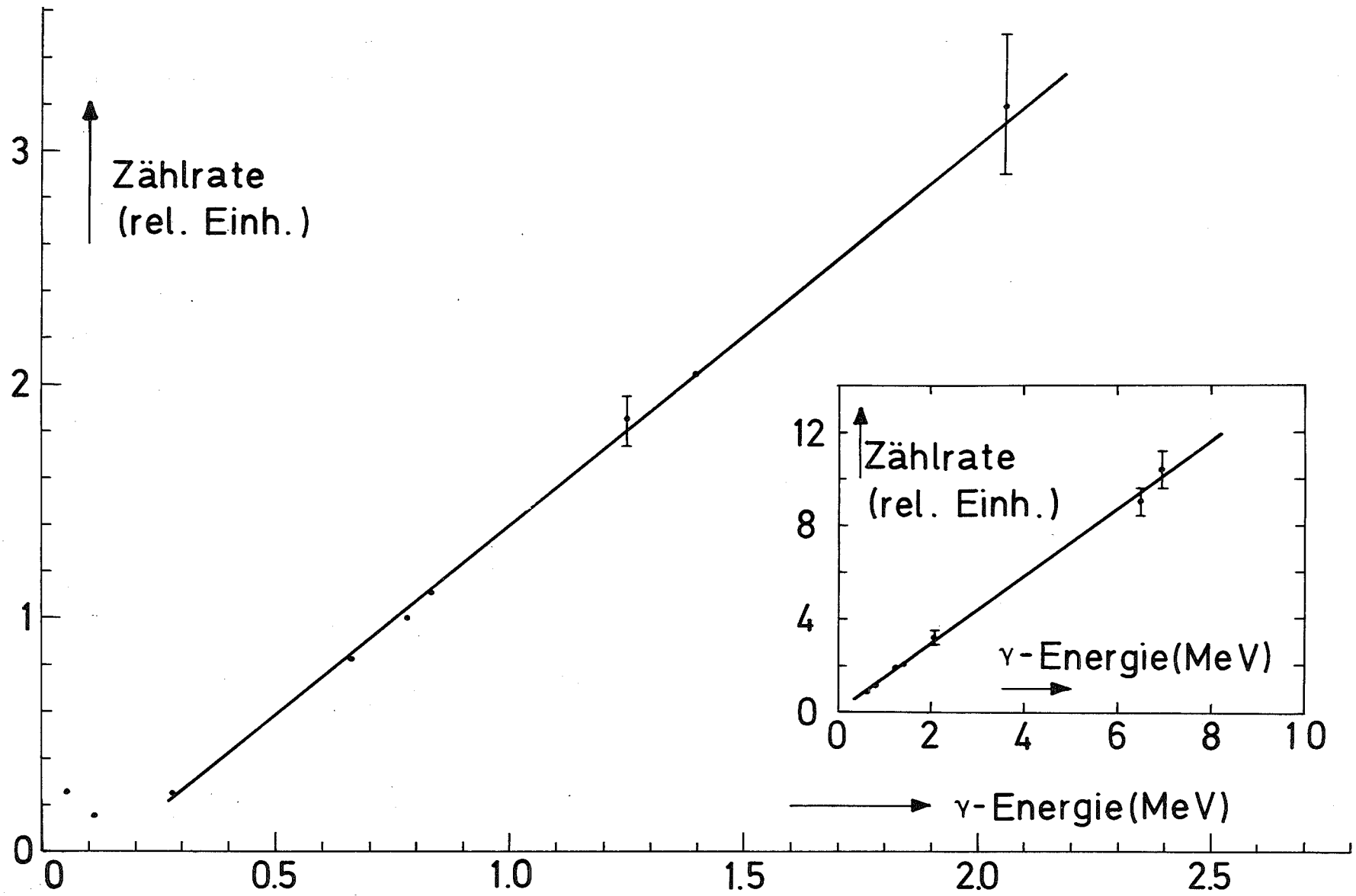


Abb. 7 Abhängigkeit der Empfindlichkeit des  $\gamma$ -Zählrohrs von der  $\gamma$ -Energie

Für Quellen, die Gammas mit verschiedenen Energien emittieren, wurde eine effektive  $\gamma$ -Energie berechnet:

$$E_{\gamma\text{eff}} = \frac{\sum_i h_i E_{\gamma i}}{\sum_i h_i} , \quad (4.1.1)$$

dabei sind  $h_i$  = Anteil der Gammas pro Zerfall

$E_{\gamma i}$  =  $\gamma$ -Energie des  $i$ -ten Zerfalls

$E_{\gamma\text{eff}}$  = Effektive  $\gamma$ -Energie.

Da für  $\gamma$ -Energien oberhalb 2.8 MeV keine geeigneten Quellen zur Verfügung standen, konnte die Linearität der Empfindlichkeit zu noch höheren Energien hin nur mit Hilfe von Gold- und Silberfolien überprüft werden, die nach Neutroneneinfang eine  $\gamma$ -Kaskade von bekannter Gesamtenergie, nämlich der Neutronenbindungsenergie, emittieren.

Die Aussagekraft dieser Messungen für die Linearität der Zählrohrempfindlichkeit hängt wesentlich von der Energieverteilung des emittierten Einfanggammastrahlenspektrums ab. Wie man den in /41/ veröffentlichten gemessenen Spektren entnehmen kann, ist insbesondere bei Au der Anteil der direkten Übergänge sehr groß, wodurch die Goldmessung sehr gut zur Überprüfung der Linearität der Zählrohrempfindlichkeit auch bei hohen  $\gamma$ -Energien geeignet ist.

Diese Messungen wurden zusammen mit den oben beschriebenen Eichmessungen an der thermischen Säule des STARK durchgeführt. Der Neutronenfluß wurde dazu mit einer Argon-gefüllten  $^{235}\text{U}$ -Spaltkammer, deren Empfindlichkeit genau bekannt war, bestimmt. Die vom Gammazählrohr registrierte Einfangrate der Gold- und Silberfolien ist von der gesamten prompten Gamma-Energie des Einfangereignisses d.h. der Neutronenbindungsenergie abhängig.

Die Nachweisempfindlichkeit der Argon-gefüllten  $^{235}\text{U}$ -Spaltkammer erhielt man aus /34/

$$Z_{\text{eff}} = 7.87 \cdot 10^{17} \pm 2 \% \quad \text{Kerne/Spaltkammer}$$

Der Neutronenfluß ergibt sich dann aus

$$\phi^{\text{th}} = \frac{R}{Z_{\text{eff}} \cdot \sigma_f^{\text{th}}}, \quad (4.1.2)$$

dabei sind  $R$  = Zählrate der Spaltkammer

$\sigma_f^{\text{th}}$  = thermischer Spaltquerschnitt.

Für die vom Gammazählrohr registrierte Einfangrate erhielt man andererseits:

$$R_{\text{Au}} = \epsilon_{\text{Au}} \cdot \bar{\Sigma}_{\text{Au}} \phi^{\text{th}} \quad (4.1.3)$$

$$R_{\text{Ag}} = \epsilon_{\text{Ag}} \bar{\Sigma}_{\text{Ag}} \phi^{\text{th}}, \quad (4.1.4)$$

dabei sind  $\bar{\Sigma}_{\text{Au}}$ ,  $\bar{\Sigma}_{\text{Ag}}$  = thermischer makroskopischer Einfangquerschnitt von Gold bzw. Silber, gemittelt über das Neutronenspektrum.

$\epsilon_{\text{Au}}$ ,  $\epsilon_{\text{Ag}}$  = Empfindlichkeit des Gammazählrohrs bei einer Gamma-Energie von 6.51 MeV bzw. 6.93 MeV /35/.

Der Anteil der epithermischen Neutronen an der Reaktionsrate ist vernachlässigbar Gold-Folien mit  $5,66 \cdot 10^{20}$ ,  $3,54 \cdot 10^{20}$ ,  $2,89 \cdot 10^{20}$ ,  $2,36 \cdot 10^{20}$ ,  $1,77 \cdot 10^{20}$  Atomen pro  $\text{cm}^2$  und Silber-Folien mit  $17,58 \cdot 10^{20}$ ,  $11,72 \cdot 10^{20}$ ,  $3,75 \cdot 10^{20}$  Atomen pro  $\text{cm}^2$  wurden verwendet. Ihre Zählraten wurden schließlich mit Hilfe von geometrischen Rechnungen auf die Foliendicke Null extrapoliert, um den Selbstabschirmungseffekt zu berücksichtigen.

Da Silber aus zwei Isotopen besteht, muß die effektive Bindungsenergie mit Hilfe der Formel

$$B_{\text{eff}} = \frac{{}^{107}_{\Sigma}\text{C} \cdot {}^{108}_{\text{B}} + {}^{109}_{\Sigma}\text{C} \cdot {}^{110}_{\text{B}}}{{}^{107}_{\Sigma}\text{C} + {}^{109}_{\Sigma}\text{C}} \quad (4.1.5)$$

berechnet werden.

Dabei sind  ${}^{107}_{\Sigma}\text{C}$  = Einfangquerschnitt von  ${}^{107}_{\text{Ag}}$

${}^{109}_{\Sigma}\text{C}$  = Einfangquerschnitt von  ${}^{109}_{\text{Ag}}$

${}^{108}_{\text{B}}$  = Neutronenbindungsenergie von  ${}^{108}_{\text{Ag}}$

${}^{110}_{\text{B}}$  = Neutronenbindungsenergie von  ${}^{110}_{\text{Ag}}$

$B_{\text{eff}}$  = effektive Neutronenbindungsenergie des Silbers.

## 4.2 Durchführung der Eichmessungen

### 4.2.1 Experimenteller Aufbau

Das Blockschaltbild des für die Eichmessungen verwendeten Aufbaus ist in Abb. 8 dargestellt. Die Anordnung besteht aus einem Meßkanal und einem Monitorkanal. Bei den Eichmessungen diente eine  ${}^{235}\text{U}$ -Spaltkammer (FC 35 20<sup>th</sup> Century) als Monitor. Als Neutronenquelle wurde die thermische Säule des STARK verwendet. Für dieses Experiment wurde der Reaktor mit einem thermischen Core beladen. Abb. 9 zeigt den Aufbau der thermischen Säule des STARK. Die Eichmessungen wurden vor der thermischen Säule in Strahlgeometrie durchgeführt. Für die Messungen wurde der Reaktor mit einer konstanten Leistung von 5 Watt gefahren. Der Anteil der epithermischen Neutronen wurde mit Goldfolien bestimmt. Dazu wurden sechs kreisförmige Goldfolien von 10 mm Durchmesser und 50  $\mu$  Dicke verwendet, von den sechs Folien waren drei von Cadmium umgeben. Ihre Aktivität wurde mit einer  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  Koinzidenz-An-

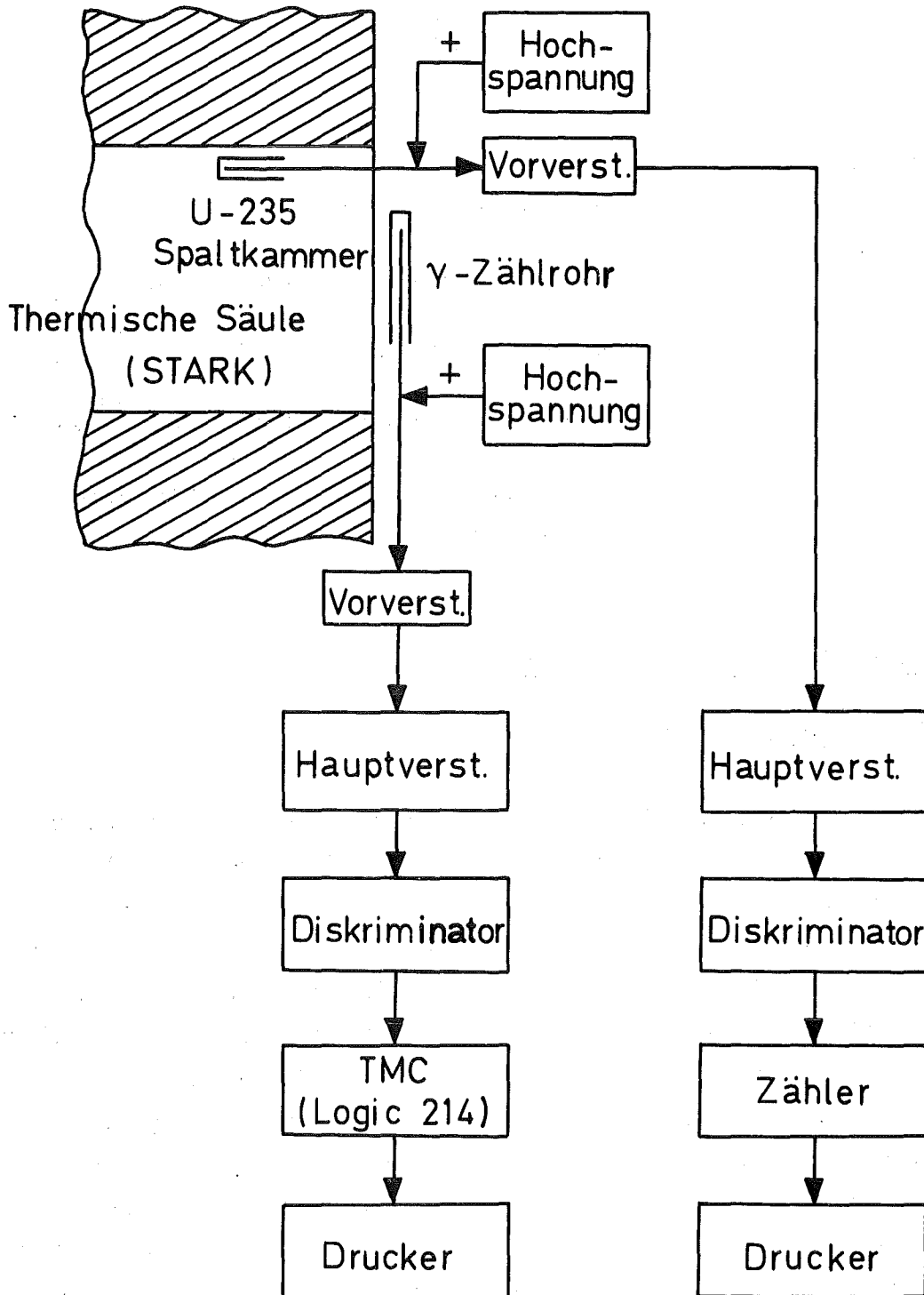


Abb. 8 Blockschaltbild für die Eichmessung

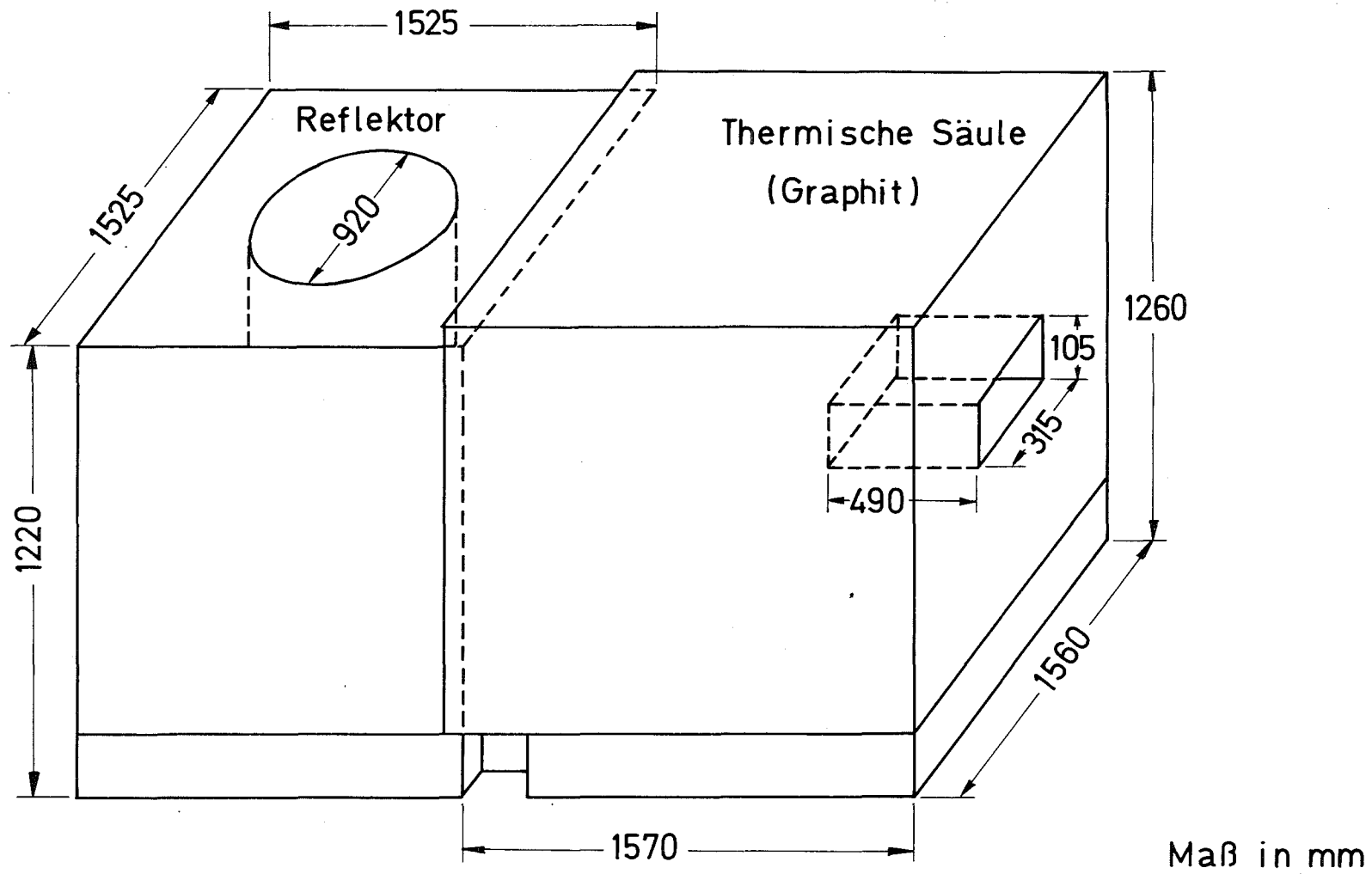


Abb. 9 Aufbau der thermischen Säule des STARK

lage gemessen. Dabei ergab sich, daß der Anteil der epithermischen Neutronen nur 0.007 % betrug und im Vergleich zur Aktivierung durch thermische Neutronen vernachlässigbar ist.

Die Stabilität des Gammaproportionalzählrohrs wurde zwischen den Messungen mit einer Cobalt-<sup>60</sup>-Quelle geprüft.

#### 4.2.2 Auswertung der Eichmessungen

Die Zählrate des von einer Uranfolie umgebenen Proportionalzählrohrs im Neutronenfluß setzt sich zusammen aus einer Untergrundzählrate (Reaktorgammas, Einfanggammas in der Zählrohrwand, natürlicher  $\gamma$ -Untergrund der Uranfolien) und einer Zählrate aufgrund von Einfanggammas sowie prompten und verzögerten Spaltgammas in der Uranfolie. Die verzögerten Spaltgammas stellen einen zeitabhängigen Untergrund dar, der bei der Bleipilemessung eliminiert wird und daher auch bei der Eichmessung eliminiert werden muß. Gelingt es, den Neutronenfluß genügend schnell ein- oder auszuschalten, so ergibt die Differenz der Zählraten vor und nach Abschalten des Neutronenflusses tatsächlich nur den Beitrag der Einfanggammas (in der Folie und in der Zählrohrwand) und der prompten Spaltgammas. Der Neutronenfluß vor der thermischen Säule des STARK wurde mit Hilfe eines 7 mm starken Borbleches, das durch sein Eigengewicht oder zusätzlich beschleunigt herunterfallen konnte, abgeschaltet. Damit konnten Ein- und Ausschaltzeiten von etwa 1/100 sec erreicht werden (Beispiel: Fallhöhe 20 cm

$$v = 200 \frac{\text{cm}}{\text{sec}} \quad \Delta t = \frac{3.7}{200} \text{ sec} = 1.35 \cdot 10^{-2} \text{ sec}$$

Der Anteil der verzögerten Gammas im Zeitintervall bis 1/100 sec ist klein und wurde vernachlässigt.

Die zeitabhängige Zählrate wurde mit einer Multiscalingeinheit gemessen (Logic 214, TMC). Es wurden stets mehrere Kanäle vor und nach dem Sprung registriert. Zur Verbesserung der



Statistik wurde die Schrittzeit mit 0.1 sec pro Kanal erheblich größer gewählt als die Abschaltzeit. Gemittelt über eine Vielzahl von Messungen sollte daher die Zählrate in dem Kanal, in dem der Sprung erfolgte, den Mittelwert der beiden benachbarten Kanalinhalt ergeben.

Da die Neutronenselbstabschirmung in den verwendeten Uran-, Gold- und Silberfolien beträchtlich ist, wurden jeweils drei Folien unterschiedlicher Dicke für die Messungen verwendet. Die Daten dieser Folien sind in Tab. 2 - 4 zusammengestellt.

Tabelle 2 Dicke der verwendeten Folien

Folie	Dicke (Atome/cm <sup>2</sup> )
Angereicherte Uran-Folien*	$3.57 \cdot 10^{20}$
	$8.92 \cdot 10^{20}$
	$17.84 \cdot 10^{20}$
Abgereicherte Uran-Folien*	$3.77 \cdot 10^{20}$
	$9.42 \cdot 10^{20}$
	$18.84 \cdot 10^{20}$
Gold**	$1.77 \cdot 10^{20}$
	$2.36 \cdot 10^{20}$
	$2.89 \cdot 10^{20}$
	$3.54 \cdot 10^{20}$
	$5.66 \cdot 10^{20}$
Silber	$3.75 \cdot 10^{20}$
	$11.72 \cdot 10^{20}$
	$17.58 \cdot 10^{20}$

\* hergestellt von der Firma Nukem

\*\* hergestellt von der Firma Degussa

Tabelle 3 Isotopenanalyse der Uran-Folien

Isotop	U-234	U-235	U-236	U-238
Angereicherte Folie	0.72 %	93.05 %	0.28 %	5.95 %
Abgereicherte Folie	0.002 %	0.406 %	0.004 %	99.588 %

Tabelle 4 Verunreinigungen der Uran-Folien

Elemente (ppm)	Ag	B	C	Cd	Co	Cr	Cu	Fe	Ni	Si	Sn	Zr
Angereicherte Folie	0.1	<0.08	570	<0.07	<1	27	0.9	195	110	20	<5	260
Abgereicherte Folie	0.04	<0.08	730	<0.07	<1	12	1.4	72	35	38	<5	50

Die Meßergebnisse für die verschiedenen Folien wurden dann mit einer weiter unten beschriebenen Methode auf die Dicke Null extrapoliert.

Abb. 10 zeigt eine für die dickste Uranfolie mit der Multiscalingeinheit registrierte Meßkurve. Bei abgeschaltetem Neutronenfluß werden in den mit A bezeichneten Kanälen Untergrundgammas vom Reaktor, der natürlichen Uranaktivität, sowie der Aktivität von in vorangegangenen Bestrahlungen erzeugten Spaltprodukten registriert. Nach Einschalten des Neutronenflusses wird in den mit B bezeichneten Kanälen dieselbe Untergrundzählrate registriert (bis auf die geringe Veränderung der  $\gamma$ -Quellstärke durch das Borblech, die aber bei einer Messung ohne Uranfolie gleichfalls auftritt und daher berücksichtigt werden kann) zusätzlich erhält man jedoch die Zählrate von den Einfang- und prompten Spaltgammas sowie von der sich allmählich aufbauenden Aktivität der Spaltprodukte. Durch Extrapolation auf den Sprungzeitpunkt erhält man die Differenzzählrate, die allein von den

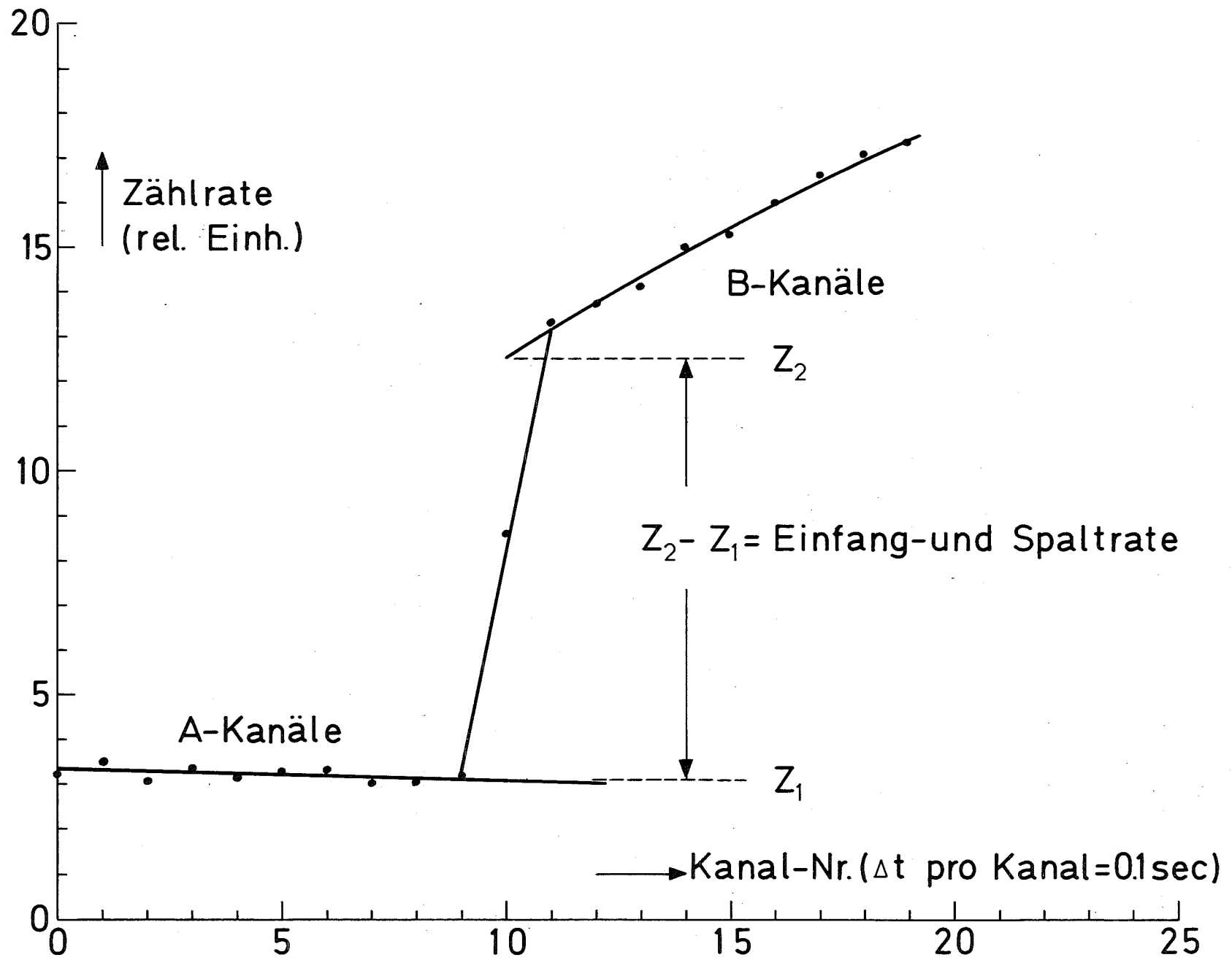


Abb. 10 Zählrate des  $\gamma$ -Zählrohrs mit Uranfolie vor und nach Einschalten des thermischen Neutronenflusses

Einfanggammas und den prompten Spaltgammas herrührt. Diese Differenzzählrate muß noch um den Beitrag, der von den Einfanggammas in der Zählrohrwand herrührt, korrigiert werden. Zu diesem Zweck wird die gleiche Messung mit bloßem Zählrohr durchgeführt. Dabei berücksichtigt man auch den geringen Einfluß, der vom Borblech herrührt. Ein kleiner Fehler entsteht allerdings dadurch, daß man die Abschirmwirkung der Folien für Reaktorgammas nicht berücksichtigt.

Ebensolche Messungen wurden mit abgereicherten U-Folien durchgeführt, um den Beitrag zur Zählrate, der von U-238 Einfängen in der angereicherten Folie herrührt, zu eliminieren.

Die Schwächung der Reaktorgammas in der Uranfolie ist vernachlässigbar. Diese Aussage läßt sich aus Messungen mit den abgereicherten Folien ableiten. Bei abgeschaltetem Neutronenfluß rührt die  $\gamma$ -Zählrate nämlich nur von der natürlichen Radioaktivität der abgereicherten Proben und von Reaktorgammas her. Falls die Reaktorgammas eine nicht vernachlässigbare Schwächung in der Uranprobe erfahren, sollte die Zählrate pro Dicke von der Probendicke abhängig sein. Die Messung zeigt jedoch keine Abhängigkeit der reduzierten Zählrate von der Probendicke.

Zur Auswertung der Eichmessungen wurde die Abhängigkeit der Reaktionsraten von der Foliendicke mit Hilfe eines einfachen Modells, das die elastische Streuung in den Folien und im Zählrohrkörper vernachlässigt, berechnet. Diese Rechnungen (Anhang) wurden dazu benutzt, um auf die Foliendicke Null zu extrapolieren. Die experimentellen Werte stimmten sehr gut mit den berechneten überein (Abb. 11). Für diese Rechnungen wurden die in Tab. 5 zusammengestellten Querschnittsdaten verwendet.

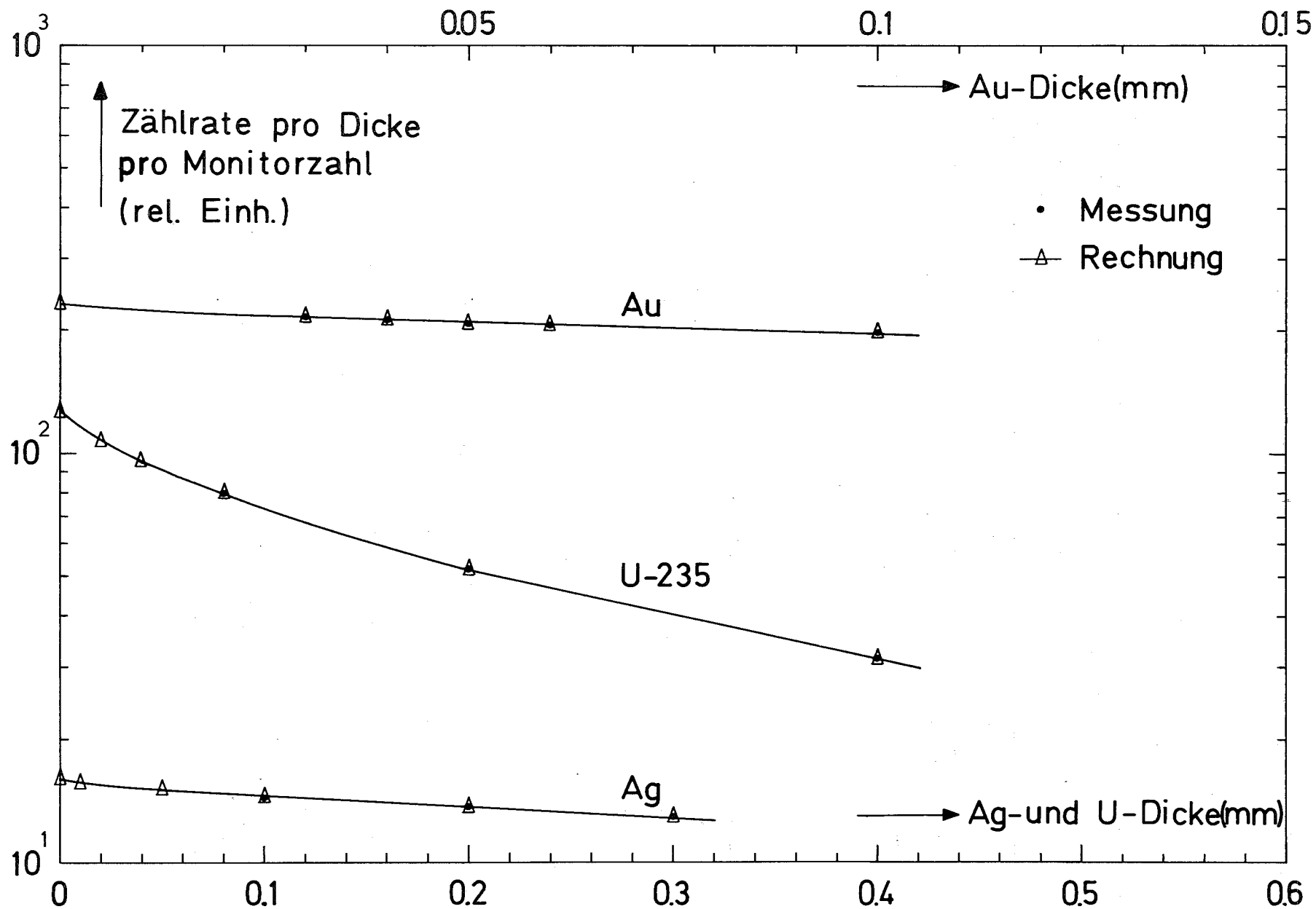


Abb. 11 Extrapolation auf die Foliendicke Null für die Eichmessungen, Vergleich von  
 Rechnung und Messung

Tabelle 5 Bei der Eichmessung verwendete thermische Querschnitte

Elemente	Kerndaten bei E = 0.0253 eV	f <sup>(1)</sup>	Kerndaten für Maxwellverteilung
U-235	$\sigma_f = 580.2 \pm 1.8 \text{ b /42/}$	0.9735	$\sigma_f^{th} = 564.8 \text{ b}$
	$\alpha = 0.1694 \pm 0.0021 \text{ /42/}$	1.0149	$\alpha^{th} = 0.1719$
Au-197	$\sigma_c = 98.6 \pm 0.3 \text{ b /49/}$	1.005	$\sigma_c^{th} = 99.1 \text{ b}$
Ag-107, 109	$\sigma_c = 63.6 \pm 0.6 \text{ b /49/}$	1.004	$\sigma_c^{th} = 63.8 \text{ b}$

(1)  $\sigma_x^{th} = f \cdot \sigma_x$ , f ist der Westcott-Faktor /26/.

Die beschriebenen Eichmessungen lieferten  $\beta = 1.09 \pm 0.035$ ,  
woraus man für die mittlere prompte Gammaenergie pro Spaltung  
 $E_f = 7.17 \text{ MeV}$  berechnet, was mit anderen Messungen (Tab. 6)  
gut übereinstimmt. Für den Normierungsfaktor

$$\frac{k_f}{k_\gamma} \text{ ergab sich } \frac{k_f}{k_\gamma} = 0.0059 \pm 0.00029.$$

Tabelle 6 Mittlere prompte Gammaenergie pro Spaltung,  $E_f$ ,  
von anderen Autoren

Autor	$E_f$ (MeV/Spaltung)
Peelle et al. /36/	$7.25 \pm 0.26$
Peelle et al. /50/	$7.2 \pm 0.8$
Maienschein et al. /51/	$7.2 \pm 0.8$

#### 4.2.3 Fehlerdiskussion der Eichmessung

Da der Fehler von  $\beta$  auch größtenteils den Fehler von  $k_f/k_\gamma$  bestimmt - wie man aus Gleichung (3.14) erkennen kann - ist es vor allem wichtig, ersteren so klein wie möglich zu machen. Die Schwierigkeit bei der beschriebenen Eichmethode liegt in der Eliminierung der verzögerten Spaltgammas. Dies gelingt nur durch plötzliches Ein- oder Ausschalten des Neutronenflusses. Da die Zeitintervalle der Multiscalingeinheit möglichst klein gewählt werden müssen, um den Auf- oder Abbau der verzögerten Gammas innerhalb dieser Intervalle vernachlässigen zu können, ist die Statistik der Zählraten in diesen Intervallen natürlich schlecht und die Extrapolation auf den Zeitpunkt des Ein- oder Ausschaltens daher mit einem relativ großen Fehler behaftet. Dieser konnte nur durch eine Vielzahl von Messungen auf einen Wert reduziert werden, der zu dem angegebenen Fehler von 3.2 % für  $\beta$  führte.

#### 4.3 Aufbau und Durchführung der Messungen am Bremszeit-spektrometer

##### 4.3.1 Beschreibung der Anlage

Der Aufbau des Bremszeitspektrometers ist in Abb. 12 dargestellt. Es besteht aus einem Bleipile und einem Neutronengenerator. Zum Aufbau des Bleipiles mit den Abmessungen  $2 \times 2 \times 2 \text{ m}^3$  wurden Bleiziegel aus Feinblei mit einem Reinheitsgrad von 99.99 % benutzt. Eine Abschätzung der Auswirkungen der Verunreinigungen auf die Eigenschaften des Spektrometers zeigt, daß diese bei dem hier beschriebenen Experiment vernachlässigt werden können. Das T-förmige Kanalsystem, bestehend aus einem Meß- und einem Targetkanal, verläuft in der waagerechten Mittelebene des Bleipiles. Die Kanäle besitzen einen Querschnitt von ursprünglich  $10 \times 10 \text{ cm}^2$ . Der Meßkanal wurde jedoch für diese Messungen auf einen Durch-

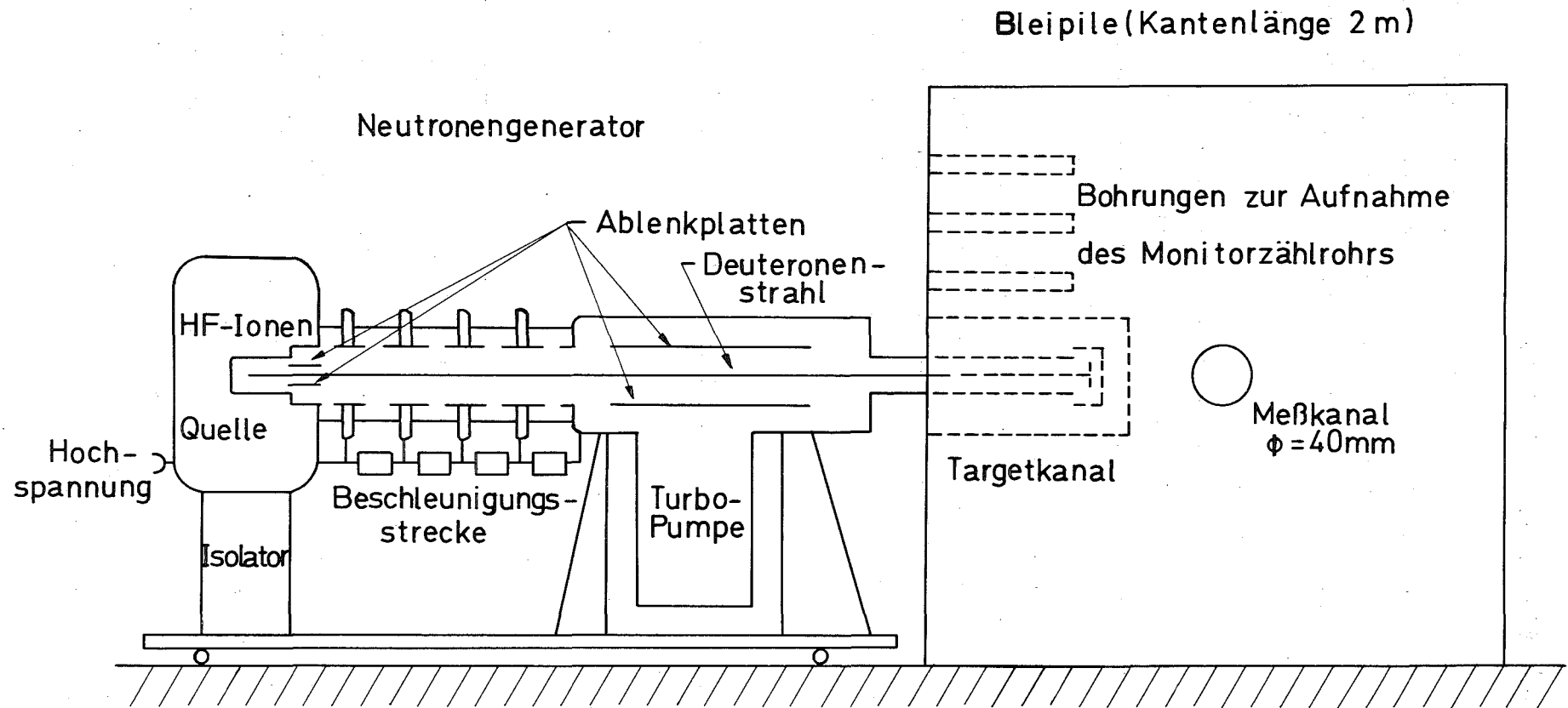


Abb. 12 Aufbau des Bremszeitspektrometers



messer von 40 mm umgebaut. Für die Monitorzählrohre wurden drei Bohrungen von 35 mm  $\phi$  und 600 mm Länge vorgesehen. Der Neutronengenerator vom Cockcroft-Walton-Typ (Fa. Accelerators Inc., USA) hat die folgenden technischen Details:

- a) Beschleunigungsanlage zur stationären und pulsformigen Erzeugung von 14 MeV-Neutronen durch die Reaktion  
 ${}^3\text{H}(d,n){}^4\text{He}$
- b) Ionenquelle: Deuterium
- c) max. Ionenstrom: 3.5 mA Deuteronen im Stationärbetrieb  
50  $\mu\text{A}$  Deuteronen im Impulsbetrieb
- d) max. Beschleunigungsspannung: + 150 kV
- e) Target: Tritium.

Das Deuteriumgas strömt aus einem Palladiumventil und wird durch eine Hochfrequenzspannung von 40.68 MHz ionisiert, und durch einen Ringmagneten konzentriert und fokussiert. Die Ionen werden durch eine Elektrode abgesaugt und zur Beschleunigungsstrecke geleitet. Das Tritium-Titan-Target befindet sich in einer Tiefe von 85 cm im Targetkanal. Das Vakuum in der Beschleunigungsstrecke wird durch eine Turbo-Molekular-Pumpe und eine Vorvakuumpumpe aufrecht erhalten. Bei den Messungen wurde der Neutronengenerator mit einer Impulsfolgefrequenz von 625 Hz und einer Impulsdauer von  $\sim 0.5$   $\mu\text{sec}$  betrieben. Die Impulsfolgefrequenz wurde so gewählt, daß die Neutronenintensität aus vorhergehenden Zyklen nicht mehr als 1 % betrug.

Mit einer U-238-Spaltkammer in der Nähe des Targets wurde der zeitliche Verlauf der Neutronenerzeugung gemessen (Abb. 13). Das erste Zeitmoment dieser Verteilung diente zur Bestimmung des Zeitnullpunktes für den Abbremsvorgang.

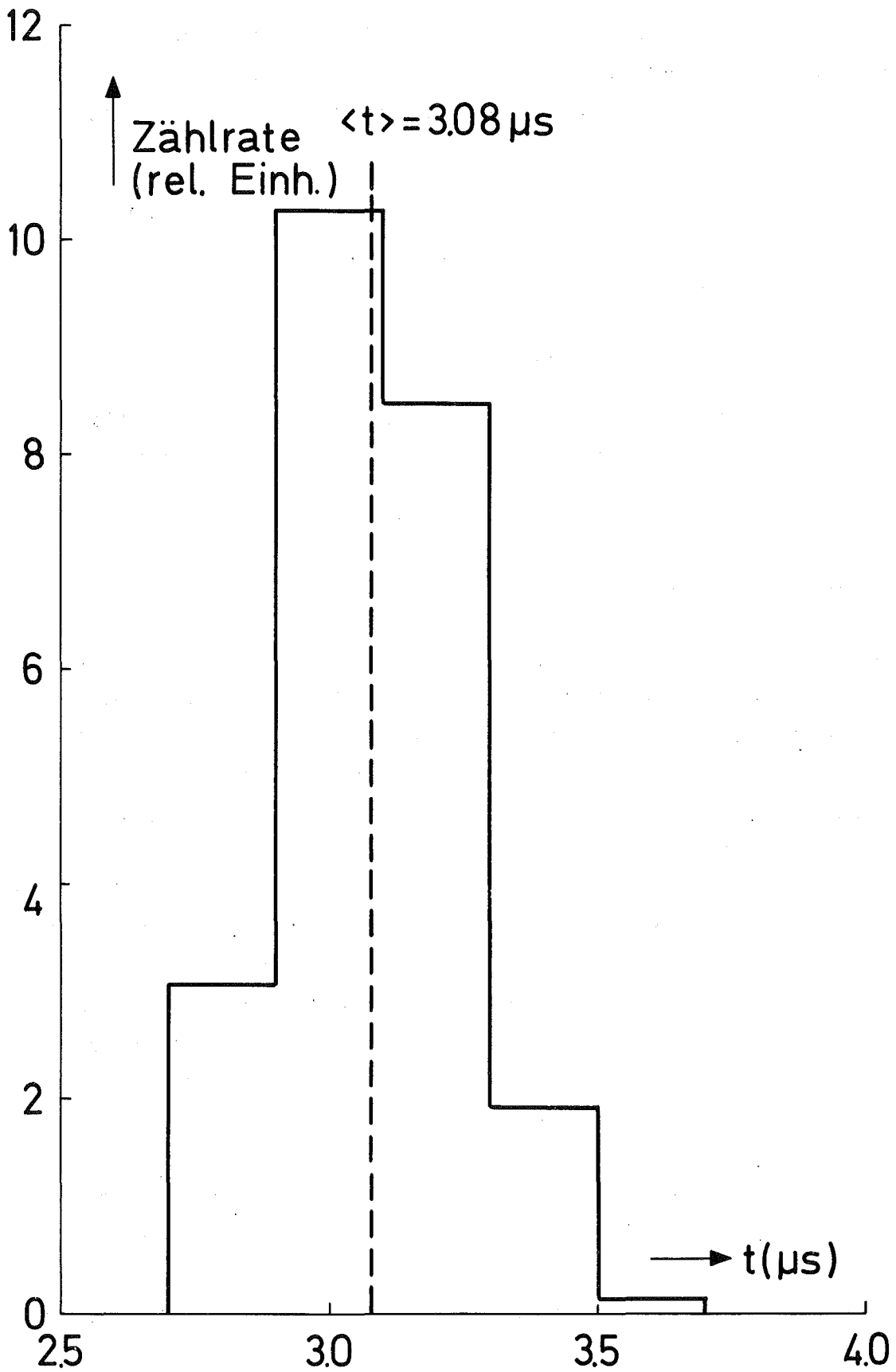


Abb. 13 Zeitliche Verteilung des Quellneutronenpulses, gemessen mit einer U-238 Spaltkammer in der Nähe des Targets

#### 4.3.2 Messvorgang am Bremszeitspektrometer

Das Blockschaltbild der Meßanordnung ist in Abb. 14 dargestellt. Die Anordnung besteht aus dem Monitorzweig und dem eigentlichen Meßzweig. Hier diente ein  $\text{BF}_3$ -Zählrohr als Monitor. Als Zeitanalysatoren wurden ein schnelles Schiebe-Register mit 32 Kanälen (Kanalbreite 0.2  $\mu\text{sec}$ ) und ein TMC-Zeitanalysator mit 256 Kanälen (Kanalbreite 0.25  $\mu\text{sec}$ ) verwendet.

Der Neutronenimpuls hat eine konstante Verzögerung von 2.8  $\mu\text{sec}$  gegenüber dem Hauptimpulsgeber, der den Meßvorgang initialisiert. Dadurch kann in den ersten fünf Kanälen des Schiebe-Registers der Untergrund, herrührend von der natürlichen Radioaktivität und der Aktivierung der Folien während der Meßdauer, sowie von Neutronen aus vorhergehenden Zyklen, registriert werden. Der zeitabhängige Untergrund während des Meßzyklus (Eingangsgammas im Bleipile und im Zählrohrkörper) wurde aus Messungen mit bloßem Gammazählrohr bestimmt. Messungen mit dem Gammazählrohr mit und ohne angereicherte und abgereicherte Uranproben und mit der Spaltkammer wurden alternierend durchgeführt. Die Stabilität des Gammazählrohrs wurde regelmäßig mit einer Cobalt-60-Quelle geprüft.

Der Neutronenenergiebereich oberhalb 6 keV wurde mit dem praktisch totzeitfreien Schiebe-Register gemessen, weil bei hohen Neutronenenergien infolge der hohen Neutronenintensität sehr große Zählraten auftreten. Für den Energiebereich unterhalb 6 keV, in dem die Zählrate kleiner ist, wurde der TMC-Zeitanalysator verwendet. Eine genügende Überlappung der beiden Meßbereiche wurde durch eine geeignete Verzögerung des TMC-Triggersignals eingestellt.

Das Gammazählrohr wurde in einer Tiefe von 56 cm (Mitte des Zählrohrs) im Meßkanal angeordnet. Die Zählrohrsignale werden über Vorverstärker, Hauptverstärker, Diskriminator und Impulsformer gleichzeitig im schnellen Schiebe-Register und im TMC-Vielkanalanalysator registriert. Ein einzelner Meßzyklus beginnt mit dem Triggerimpuls des Hauptimpulsgebers,

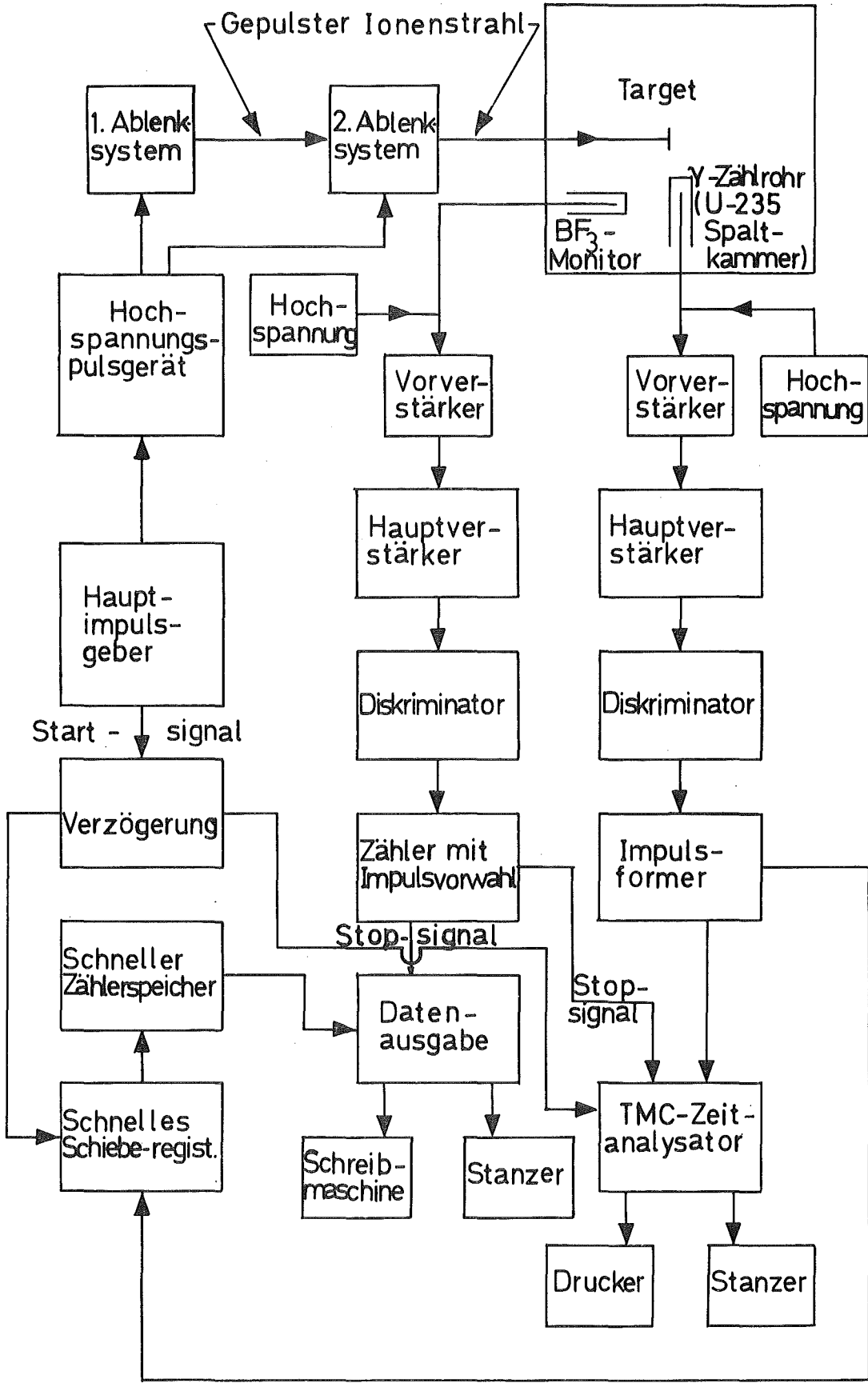


Abb. 14 Blockschaltbild der Meßanordnung am Bremszeit-spektrometer

dieser steuert die Hochspannungspulsgeräte, die den Deuteronenstrahl zur Erzeugung des 14-MeV-Impulses kurzzeitig ( $0.5 \mu\text{s}$ ) auf das Target lenken. Das schnelle Schiebe-Register wird ohne Verzögerung mit dem Triggerimpuls des Hauptimpulsgebers gestartet, dagegen wird der TMC-Vielkanalanalysator mit einer Verzögerung von einigen Mikrosekunden nach Ende des Targetimpulses gestartet.

Die Dauer einer Messung wurde durch das Erreichen einer vorgewählten Impulszahl des als Monitor verwendeten  $\text{BF}_3$ -Zählrohrs bestimmt. Die Monitorvorwahl war so eingestellt, daß bei jeder Messung etwa  $10^7$  Zyklen ( $\sim 4$  Stunden) durchlaufen wurden.

Die Messungen mit dem Gammazählrohr bestehen aus folgenden drei Schritten:

a) Messungen mit dem bloßen Gammazählrohr

Dieser Meßvorgang liefert den zeitabhängigen Untergrund, nämlich Gammas von Einfangreaktionen im Blei, in den Verunreinigungen des Bleipiles und im Zählrohrkörper. Nach Korrektur dieser Zählraten für Beiträge von Neutronen aus vorhergehenden Zyklen erhält man  $Z_0(t)$ , die Untergrundzählrate des Bleipiles zur Zeit  $t$  nach dem Neutronenimpuls.

b) Messungen des Gammazählrohrs mit angereicherten Uran-Proben

Das Gammazählrohr wurde von den zylindrischen angereicherten Uran-Proben (93.5 % U-235) umschlossen. Die Zählrate, die in den ersten fünf Kanälen des Schiebe-Registers registriert wird, stammt jetzt von der natürlichen Radioaktivität, der Probenaktivierung und von Neutronen aus vorhergehenden Zyklen. Nach Abzug dieser Zählrate bekommt man aus dieser Messung die zeitabhängige Spalt- und Einfangrate in der Probe und im Zählrohr, sowie den Untergrund des Bleipiles. Das Ergebnis

dieser Messung bezeichnet man als  $Z_{an}(t)$ . Die angereicherte Uran-Probe enthält 5.95 % U-238 und 1 % U-234, U-236. Der Beitrag von U-234 und U-236 wurde vernachlässigt.

c) Messungen des Gammazählrohrs mit abgereicherten Uran-Proben

Der Beitrag des U-238 zur Zählrate  $Z_{an}(t)$  wurde durch eine Messung mit abgereicherten Uran-Proben (99.6 %  $^{238}\text{U}$ ) bestimmt. Diese Messung wird in der gleichen Art und Weise wie die Messung mit den angereicherten Uran-Proben durchgeführt und korrigiert. Wir bezeichnen das Ergebnis dieser Messung mit  $Z_{ab}(t)$ .

Aus diesen drei Messungen kann man schließlich die Spalt- und Einfangrate in den U-235 Folien gewinnen. Unter der Annahme, daß die Untergrundgammas des Bleipiles keine Schwächung in den Uran-Proben erfahren, bekommt man die zeitabhängigen Reaktionsraten der Spaltung und des Einfangs im U-235 aus:

$$Z_{\gamma}(t) = [Z_{an}(t) - Z_o(t)] - 0.0595 \cdot [Z_{ab}(t) - Z_o(t)]$$

(4.3.2.1)

Die folgenden Beispiele (Tab. 7) für Neutronenenergien von  $E_n = 0.2 \text{ keV}$  und  $5.11 \text{ keV}$  verdeutlichen das Verhältnis von Signal zu Untergrund.

Tabelle 7 Beispiele der Zählraten des  $\gamma$ -Zählrohrs im Bleipile

$E_n$	0.2 keV	5.11 keV
$Z_o \left( \frac{\text{Impulse}}{\text{Monitorzahl} \cdot \text{sec}} \right)$	86	1927
$Z_{ab} \left( \frac{\text{Impulse}}{\text{Monitorzahl} \cdot \text{sec}} \right)$	311	2330
$Z_{an} \left( \frac{\text{Impulse}}{\text{Monitorzahl} \cdot \text{sec}} \right)$	1473	4657
$Z_\gamma \left( \frac{\text{Impulse}}{\text{Monitorzahl} \cdot \text{sec}} \right)$	1374	2706

Diese Daten gelten für die dünnsten Uranfolien. Das Signal zu Untergrundverhältnis für die dickste Folie ist daher noch erheblich besser.

Zur Bestimmung des Selbstabschirmungseffekts wurden die Messungen mit drei verschieden dicken angereicherten Folien und drei verschieden dicken abgereicherten Folien durchgeführt. Die Daten der Uranfolien wurden bereits in Tab. 2 - 4 angegeben.

Messungen mit der Spaltkammer

Die  $^{235}\text{U}$  Spaltrate wurde mit Hilfe von  $^{235}\text{U}$ -Spaltkammern bestimmt, und zwar wurden zwei geeichte  $^{235}\text{U}$ -Spaltkammern (FC 144 20<sup>th</sup> Century) zusammen mit einer Additionsstufe verwendet. Nach Korrektur der Zählrate für Beiträge von Neutronen aus vorangehenden Zyklen gewinnt man die  $^{235}\text{U}$ -

Spaltrate  $Z_f(t)$ , die bei der Berechnung der  $\alpha$ -Werte mit Hilfe der Formel (3.8) verwendet wird.

#### 4.3.3 Vorteile des gewählten experimentellen Aufbaus

Die Vorteile dieses experimentellen Aufbaus sind:

- a) Die Detektoren und die zu untersuchenden Proben befinden sich an einem Ort mit nahezu isotropem Neutronenfeld im Bleipile. Durch die Streuung in der Probe und im Material des Detektors ändert sich das Neutronenfeld nur wenig (siehe Abschnitt 5.4).
- b) Die  $\alpha$ -Werte, die mit dem Bremszeitspektrometer gemessen werden, sind innerhalb breiterer Energiegruppen mit einem Wichtungsspektrum (Gaußverteilung) gemittelte Werte und daher direkt in Multigruppensätzen verwendbar.
- c) Die Schwierigkeit der Untergrundbestimmung ist gegenüber der Flugzeitmethode erheblich reduziert.



## 5. Auswertung der Messungen

### 5.1 Selbstabschirmung in den Proben

Die Gleichung (3.8) aus Abschnitt 3 gilt nur für sehr dünne Proben. Für dicke Folien müssen die Meßergebnisse zunächst bezüglich der Selbstabschirmung korrigiert werden.

Für die Extrapolation der mit dem Untergrund korrigierten  $\gamma$ -Zählraten auf die Foliendicke Null wurden die Gleichungen von Wigner benutzt /39/:

$$\sigma_{n\gamma} = \frac{\sigma_{n\gamma}^0}{1+n\sigma_t \bar{l}} \quad (5.1.1)$$

$$\sigma_{nf} = \frac{\sigma_{nf}^0}{1+n\sigma_t \bar{l}} \quad (5.1.2)$$

$$\sigma_{n\gamma} + \beta \sigma_{nf} = \frac{\sigma_{n\gamma}^0 + \beta \sigma_{nf}^0}{1+n\sigma_t \bar{l}},$$

damit ergibt sich aus Gleichung (3.6)

$$\begin{aligned} Z_Y(t) &= k_Y [\sigma_{n\gamma}(E) + \beta \sigma_{nf}(E)] \phi(t) \\ &= k_Y \left[ \frac{\sigma_{n\gamma}^0(E) + \beta \sigma_{nf}^0(E)}{1+n \sigma_t^0(E) \bar{l}} \right] \phi(t) \end{aligned} \quad (5.1.3)$$

oder

$$\frac{1}{Z_Y(t)} = \frac{1}{Z_Y^0(t)} + \frac{\sigma_t^0(E)}{Z_Y^0(t)} n \bar{l} \quad (5.1.4)$$

Dabei sind:

- $\sigma_{ny}$  = effektiver Einfangsquerschnitt
- $\sigma_{ny}^0$  = Einfangsquerschnitt für Foliendicke Null
- $\sigma_{nf}$  = effektiver Spaltquerschnitt
- $\sigma_{nf}^0$  = Spaltquerschnitt für Foliendicke Null
- $\sigma_t^0$  = totaler Wirkungsquerschnitt
- $n$  = Atomzahldichte, Atome pro  $\text{cm}^3$
- $\bar{l}$  = mittlere Sehnenlänge

Die mittlere Sehnenlänge für die hohlzylindrische Probe wurde aus der folgenden Beziehung erhalten /14/:

$$\bar{l} = \frac{2}{R_o} \cdot \frac{R_o^2 - R_i^2}{R_o + L} \cdot L \quad (5.1.5)$$

dabei sind:

- $R_o$  = äußerer Radius der Probe
- $R_i$  = innerer Radius der Probe
- $L$  = Probenlänge.

Aus den Messungen mit Proben unterschiedlicher Dicke erhält man  $Z_Y^0(t)$  durch Extrapolation mittels der linearen Beziehung (5.1.4).

Die Extrapolation wurde durch Anpassung einer Geraden an die Meßergebnisse mit Hilfe der Methode der kleinsten Fehler-Quadrate durchgeführt /37/. Ein Beispiel zeigt Abb.15.

Die Selbstabschirmungsfaktoren in den Proben wurden auch mit Monte Carlo Rechnungen bestimmt. Hierfür wurde das Karlsruher Monte-Carlo-Programm KAMCCO /40/ verwendet. Dabei wurden die benötigten Wirkungsquerschnitte und Kerndaten von KEDAK genommen. Bei den Rechnungen wurde

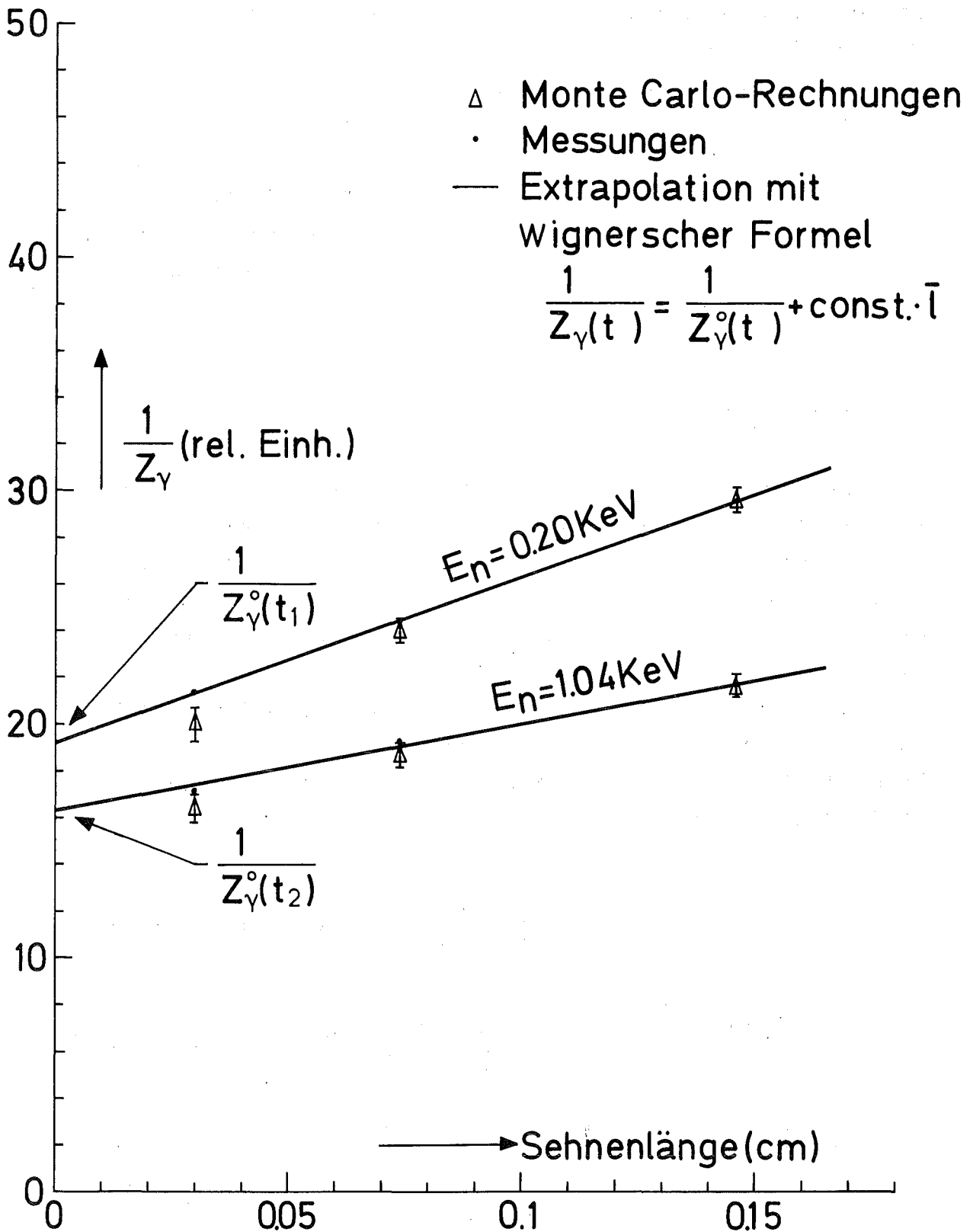


Abb.15 Beispiele für die Extrapolation der reziproken  $\gamma$ -Zählraten auf die Foliendicke Null zur Bestimmung der Selbstabschirmungskorrektur.

eine isotope Neutronenquelle in der Mitte des Zählrohrs an der Oberfläche der Uranfolien angenommen. Die Dicke der Uranfolien wurde über einen weiten Bereich variiert, und die Ergebnisse der Rechnungen wurden schließlich auf den Meßwert der dicksten Uranfolie normiert. Wie in Abb.15 gezeigt, ist die Übereinstimmung zwischen dem mit Hilfe der Wignerschen Formel erhaltenen Extrapolationswert und dem mit Hilfe der Rechnungen extrapolierten Wert zufriedenstellend. Die Extrapolation wurde für jeden Meßpunkt gemacht.

## 5.2 Totzeit-Effekte

Für die oberen Neutronenenergien, bei denen hohe Zählraten auftreten, wurde das schnelle Schieberegister als Zeitanalysator verwendet. Das Schieberegister hat praktisch keine Totzeit. Wegen der beschränkten Kanalzahl (32 Kanäle) des Schieberegisters mußte der TMC-Zeitanalysator für die unteren Neutronenenergien benutzt werden. Die im TMC-Zeitanalysator registrierte Zählrate mußte jedoch für die konstante Totzeit des Analysators von 16 µsec korrigiert werden. Dies geschah mit Hilfe der folgenden Gleichungen /21/:

$$z_i(t)^{\text{tot}} = z_i(t) \left[ 1 + \sum_{j=1}^i \frac{z_j(t)}{\text{ZYKL}} \right], \text{ für } i \leq \frac{16}{\text{KB}} \quad (5.2.1)$$

$$z_i(t)^{\text{tot}} = z_i(t) \left[ 1 + \sum_{j=i-\frac{16}{\text{KB}}}^i \frac{z_j(t)}{\text{ZYKL}} \right], \text{ für } i > \frac{16}{\text{KB}} \quad (5.2.2)$$

Dabei sind:

$z_i(t)^{\text{tot}}$  = korrigierte Impulsanzahl im Kanal i

$z_i(t)$  = unkorrigierte Impulsanzahl während eines Meßvorgangs im Kanal i

KB = Kanalbreite in µsec des Zeitanalysators

ZYKL = Zykluszahl eines Meßvorgangs

Die Totzeit-Korrekturen blieben bei allen Messungen stets unterhalb 4%.

### 5.3 Schwächung des zeitabhängigen $\gamma$ -Untergrunds durch die Proben

Durch die Uranfolien wird der aus dem Bleipile kommende  $\gamma$ -Untergrund geschwächt. Bei der Untergrundmessung mit bloßem Zählrohr wird diese Schwächung nicht erfaßt. Man mißt daher einen etwas zu hohen Untergrund. Falls das  $\gamma$ -Spektrum eine erhebliche Intensität unterhalb einiger 100 keV besitzt, kann die Schwächung der gesamten Untergrundzählrate für die dicksten Uranfolien beträchtliche Werte annehmen. Zur Untersuchung dieses Problems wurde das Gammaspektrum mit Si(Li) Detektoren im Energiebereich von 150 keV bis 3 MeV bestimmt. Das primär gemessene Comptonspektrum wurde dazu mit Hilfe von experimentell bestimmten Antwortfunktionen entfaltet. Abb.16 zeigt das so gewonnene Gammaspektrum, das in einem Zeitintervall von 5  $\mu$ sec bis 15  $\mu$ sec nach dem Neutronenimpuls gewonnen wurde. Die Abhängigkeit des Gammaspektrums vom Zeitpunkt nach dem Neutronenimpuls wurde durch mehrere Messungen für folgende Zeitintervalle überprüft: von 0  $\mu$ sec bis 10  $\mu$ sec und von 5  $\mu$ sec bis 30  $\mu$ sec. Leider konnten die Messungen aus Intensitätsgründen nicht zu noch späteren Zeiten durchgeführt werden. Aus den obigen Messungen darf man jedoch schließen, daß innerhalb des für die  $\alpha$ -Messungen wichtigen Zeitintervalls von 5  $\mu$ sec bis 30  $\mu$ sec die Zeitabhängigkeit des  $\gamma$ -Spektrums für das hier betrachtete Problem der Schwächung in den Uranfolien von untergeordneter Bedeutung ist. Das in Abb.16 gezeigte Spektrum fällt unterhalb 200 keV steil ab, da die  $\gamma$ -Absorptionsquerschnitte von Blei im Energiebereich darunter stark anwachsen. Das Spektrum der Abb.16 wurde

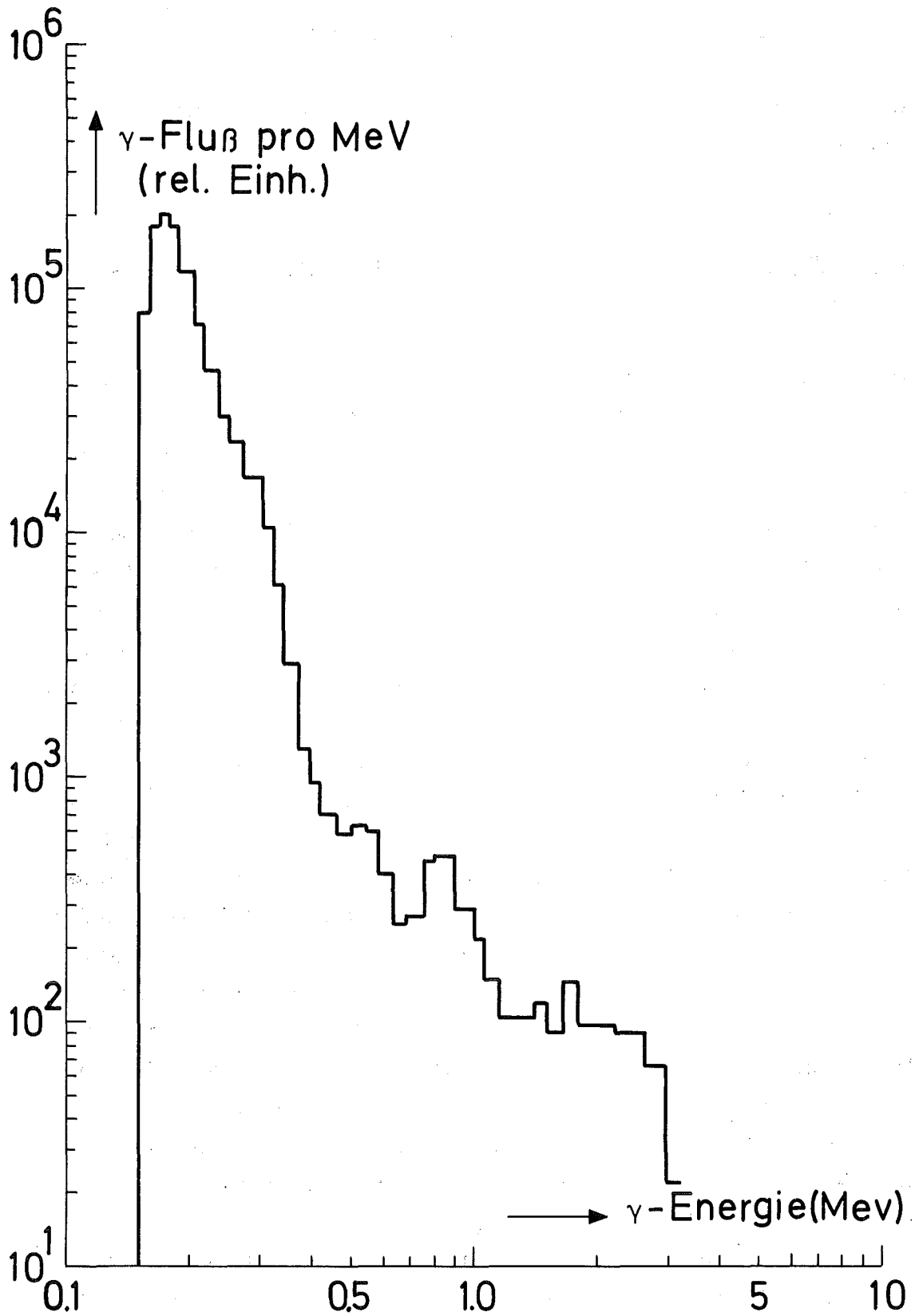


Abb.16 Gemessenes Gammaskpektrum im Bleipile

nun dazu benutzt, um Schwächungsfaktoren für die Uranfolien auszurechnen:

$$Z_r^0 = \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \epsilon(E) \phi_r(E) dE \quad (5.3.1)$$

$$Z_r = \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \epsilon(E) \phi_r(E) e^{-\mu_e(E)t} dE \quad (5.3.2)$$

Dabei sind:

$\epsilon(E)$  = Empfindlichkeit des Gamma-Zählrohrs

$\phi_r(E)$  = Gamma-Fluß

$t$  = effektive Dicke der Probe

$\mu_e(E)$  = Gamma-Energie-Absorptionsquerschnitt in  $\text{cm}^{-1}$

$Z_r^0$  = Gammazählrate ohne Schwächung in den Folien

$Z_r$  = Gammazählrate mit Schwächung in den Folien.

Dann bekommt man den Korrekturfaktor aus:

$$\frac{Z_r}{Z_r^0} = \frac{\int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \epsilon(E) \phi_r(E) e^{-\mu_e(E)t} dE}{\int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \epsilon(E) \phi_r(E) dE} \quad (5.3.3)$$

Dabei ergaben sich Korrekturfaktoren von maximal 1.03 für die dickste Uranfolie. Dieser Wert stellt mit Sicherheit eine obere Grenze dar, da das  $\gamma$ -Emissionsspektrum von Blei

nach Neutroneneinfang nur eine monoenergetische Linie von 7.38 MeV /41/ besitzt. Im Untergrundspektrum des Bleipiles sollte diese Linie daher eine erhebliche Intensität im Vergleich zum Restspektrum besitzen. Diese Tatsache bringt jedoch die Korrekturfaktoren noch näher an den Wert 1.00 heran. Diese Schlußfolgerungen werden auch dadurch erhärtet, daß die auf die Foliendicke reduzierten Zählraten der drei Uranfolien für Energien, bei denen die Neutronen-selbstabschirmung vernachlässigt werden kann, innerhalb der sonstigen Fehlergrenzen gleiche Werte ergeben.

#### 5.4 Streueffekte im $\gamma$ -Zählrohr

Die Neutronenenergieverteilung im Bleipile ist bereits im Abschnitt 2.2 beschrieben worden. Hier müssen noch die Neutronen-Streuungen im  $\gamma$ -Zählrohrkörper (Al) betrachtet werden, die zu einer Änderung der Neutronenenergieverteilung führen können. Diese Effekte wurden mit Hilfe von Monte-Carlo-Rechnungen untersucht. In diesen Rechnungen wurde eine isotope monoenergetische Neutronenquelle in der Mitte eines Zählrohrs an der Oberfläche der Uranfolie angenommen, das sich in einem Hohlzylinder aus Blei mit 10 cm Wandstärke befand. Neutronen, deren Energien kleiner als die der Quellneutronen sind, haben entweder Streuungen an den Pb-Atomen des simulierten Bleipiles und/oder den Al-Atomen des Zählrohrs gemacht. In einer zweiten Rechnung wurde das Zählrohr entfernt, die Neutronen jedoch vom gleichen Ort gestartet. Aus einem Vergleich der beiden Neutronenflüsse bei Energien unterhalb der Quellenergie kann man den Streueffekt des  $\gamma$ -Zählrohrs abschätzen.

Die Ergebnisse zeigten, daß die dadurch verursachten Änderungen der Reaktionsraten in den Uranfolien vernachlässigt werden können.



### 5.5 Fehlerdiskussion der gemessenen $\alpha$ -Werte

Den gesamten Fehler der  $\alpha$ -Werte erhält man aus einer Diskussionsion der Gleichung (3.8):

$$\alpha(E) = \frac{k_f}{k_\gamma} \frac{I_\gamma(t)}{I_f(t)} - \beta \quad (3.8)$$

oder

$$\alpha = f\left(\frac{k_f}{k_\gamma}, I_\gamma, I_f, \beta\right) \quad (5.5.1)$$

Daraus bekommt man für den Fehler  $\Delta\alpha$  den folgenden Ausdruck /37/:

$$\Delta\alpha = \pm \sqrt{\left[\frac{\partial f}{\partial \left(\frac{k_f}{k_\gamma}\right)} \Delta\left(\frac{k_f}{k_\gamma}\right)\right]^2 + \left[\frac{\partial f}{\partial I_\gamma} \Delta I_\gamma\right]^2 + \left[\frac{\partial f}{\partial I_f} \Delta I_f\right]^2 + \left[\frac{\partial f}{\partial \beta} \Delta\beta\right]^2} \quad (5.5.2)$$

Bei einer Betrachtung der einzelnen Terme in Gleichung (5.5.2) ergibt sich, daß der Einfluß der statistischen Fehler von  $I_\gamma$  und  $I_f$ , die stets kleiner als 1% waren, auf den Fehler von  $\alpha$  klein ist im Vergleich zum Fehler, der durch die Unsicherheit in den Eichfaktoren verursacht wird. Bei den meisten  $\alpha$ -Werten überwiegt der Fehler in  $\frac{k_f}{k_\gamma}$ , jedoch ist der Fehler von  $\frac{k_f}{k_\gamma}$  seinerseits hauptsächlich durch den Fehler von  $\beta$  bestimmt (siehe Abschnitt 4.2.3). Der mit Hilfe der Formel (5.5.2) berechnete Fehler von  $\alpha$  lag im gesamten Energiebereich zwischen 13% und 20%.

## 6. Meßergebnisse und Vergleich mit anderen Messungen

Aus den korrigierten und extrapolierten Zählraten wurden schließlich mit Hilfe der Formel (3.8) die Verhältnisse der Wirkungsquerschnitte von  $^{235}\text{U}$  für Einfang und Spaltung im Energiebereich von 200 eV bis 20 keV gewonnen. Der Selbstabschirmungseffekt der gemessenen Proben wurde bis 6 keV Neutronenenergie berücksichtigt.

Die durchgezogene Kurve in Abb.17 zeigt die gewonnenen  $\alpha$ -Werte. Generell nimmt der  $\alpha$ -Wert im gemessenen Energiebereich mit wachsender Energie ab, da der Spaltquerschnitt mit der Neutronenenergie ansteigt. Eine Spaltresonanz zwischen 0.5 ~ 0.7 keV wird deutlich bestätigt und führt zu einem tiefen Einschnitt der  $\alpha$ -Werte an dieser Stelle. Die gemessenen  $\alpha(E)$ -Werte von  $^{235}\text{U}$  sind zusammen mit den statistischen Fehlern in Tab.8 angegeben.

Tabelle 8 Gemessene  $\alpha$ -Werte

E, keV	$\alpha(E)$	E, keV	$\alpha(E)$	E, keV	$\alpha(E)$
12,76	0.33±0.07*	2.11	0.45±0.03	0.61	0.38±0.05
9,35	0.37±0.02	1.85	0.47±0.05	0.56	0.36±0.04
7.82	0.36±0.02	1.54	0.45±0.06	0.47	0.57±0.05
6.33	0.36±0.02	1.28	0.51±0.03	0.41	0.61±0.03
5.17	0.35±0.02	1.05	0.58±0.03	0.35	0.71±0.03
4.23	0.38±0.04	0.91	0.58±0.05	0.30	0.72±0.03
3.37	0.33±0.03	0.79	0.53±0.05	0.25	0.70±0.03
2.68	0.42±0.03	0.70	0.48±0.05	0.20	0.79±0.10*

Hier ist der statistische Fehler angegeben.

\*gesamter Fehler.

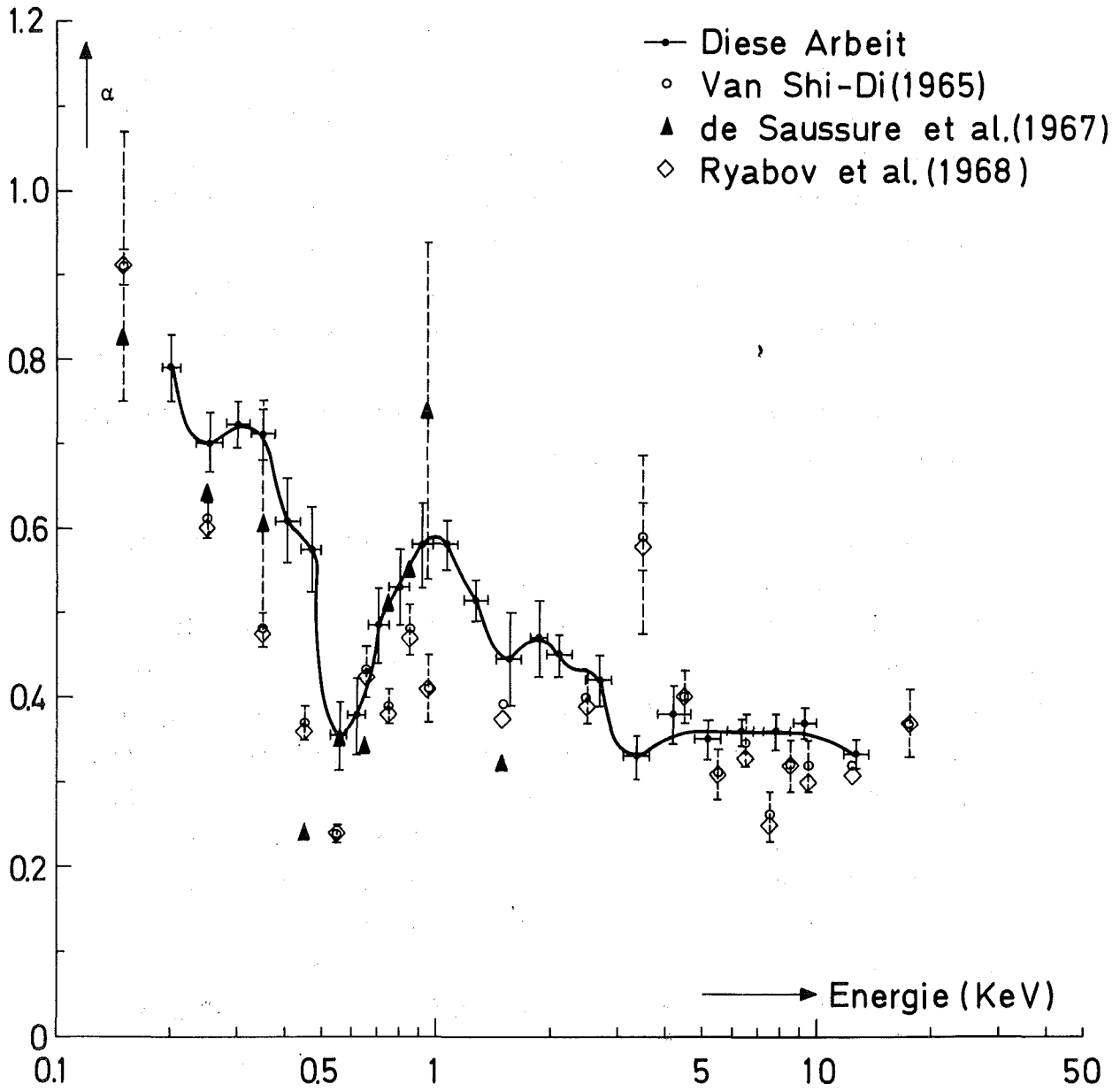


Abb. 17 Verhältnis von Einfang- zu Spaltquerschnitt von U-235.

Abb.17 und Abb.18 zeigen die gemessenen  $\alpha(E)$ -Werte zusammen mit den Ergebnissen anderer Autoren. Die angegebenen Fehler der eigenen Messung enthalten die statistische Unsicherheit sowie die Unsicherheit aus der Selbstabschirmungskorrektur für die  $^{235}\text{U}$ -Folien. Alle anderen in Abb.17 und Abb.18 dargestellten experimentellen Daten wurden mit der Flugzeitmethode gewonnen. Spalt- und Einfangereignisse wurden in den Arbeiten von Van Shi-Di et al. /3/, Ryabov et al./4/ und Saussure et al. /6/ in Abb.17 durch eine verzögerte Koinzidenzmessung getrennt (siehe Abschnitt 2). Saussure et al. haben einen LINAC als Neutronenquelle und einen Satz von Resonanzparametern für gut aufgelöste Resonanzen zur Eichung verwendet. Außerhalb des Energiebereichs  $0.4 \sim 0.5$  keV stimmen die  $\alpha$ -Werte dieser Arbeit mit den Ergebnissen von Saussure et al. innerhalb der Fehlergrenzen überein.

Der Vergleich mit den neueren Messungen von Kurov et al. /5/ ist in Abb.18 dargestellt. In der Arbeit von Kurov et al. wurden zwei Meßmethoden verwendet. Die erste Methode ist ähnlich der von Van Shi-Di et al. und Ryabov et al. Bei der zweiten Methode wurde ähnlich wie bei den Messungen von Perez et al. eine Spaltkammer als Probe und Detektor für Spalttereignisse und ein Flüssigkeitsscintillator als Detektor für Spalt- und Einfangereignisse verwendet. Spalt- und Einfangereignisse wurden daher durch eine Koinzidenzmessung zwischen der Spaltkammer und dem Flüssigkeitsszintillator unterschieden. Sonst ist das Experiment von Kurov et al. ähnlich dem von Van Shi-Di et al. und das Experiment von Perez et al./9/ ähnlich dem Saussure et al. Bei beiden Messungen wurden aufgelöste Resonanzen zur Eichung verwendet.

Oberhalb einer Neutronenenergie von 0.5 keV stimmen die Ergebnisse dieser Arbeit mit Perez et al. innerhalb 15% und oberhalb 1 keV mit Kurov et al. innerhalb 25% überein. Die  $\alpha(E)$ -Werte dieser Arbeit liegen im Energiebereich von

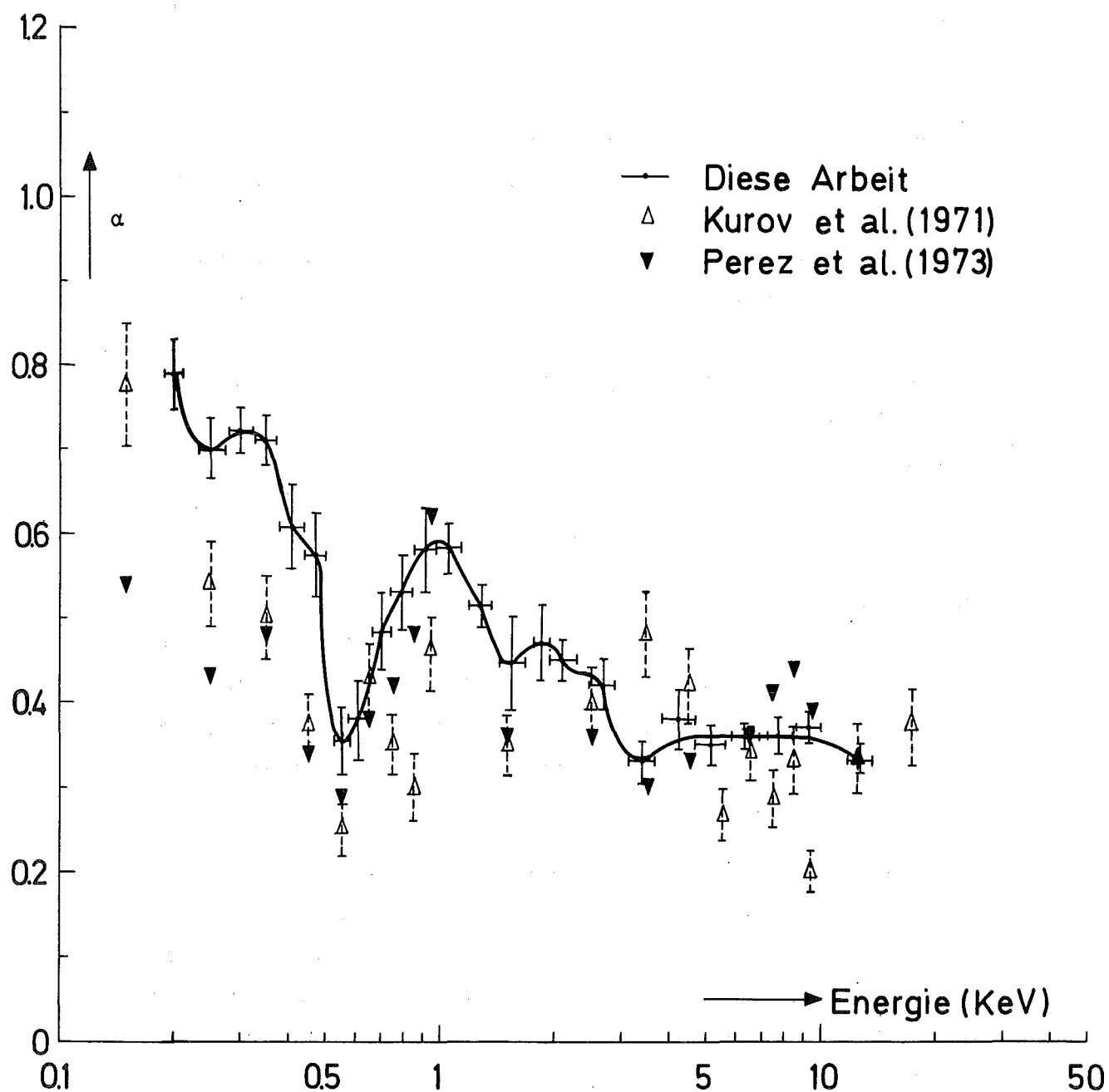


Abb.18 Vergleich der hier gemessenen  $\alpha$ -Werte von U-235 mit neueren Ergebnissen anderer Autoren.

1 keV bis 20 keV zwischen den Werten von Kurov et al. und Perez et al. Unterhalb 0.5 keV beträgt der Unterschied zwischen dieser Arbeit und den beiden zitierten Arbeiten mehr als 30%. Als Grund für die Abweichungen zwischen den verschiedenen Messungen kommen hauptsächlich 5 Punkte in Betracht:

a) unterschiedliche Eichmessungen

Der Reaktor STARK wurde in dieser Arbeit bei den Eichmessungen als thermische Neutronenquelle verwendet.

Die Eichmessung dieser Arbeit besitzt zwei Vorteile:

- 1) den hohen thermischen Neutronenfluß ( $\phi^{\text{th}} = 3.4 \times 10^3$  n/cm<sup>2</sup>·sec) (Abschnitt 4.1),
- 2) ist die Genauigkeit der thermischen Querschnitte gut (<1.5%) /42/.

Die aufgelösten Resonanzparameter, die bei den Eichmessungen der Flugzeitmethode verwendet wurden, besitzen dagegen große Unsicherheiten (10~40%) /5/.

b) Intensität der Neutronenquelle

Die Neutronenintensität im Bremszeitspektrometer ist um einen Faktor  $10^3 \sim 10^4$  größer als der bei beiden Flugzeitmessungen verwendeten Anlagen/11/, bei diesen ist deswegen eine lange Meßzeit notwendig um genügende Statistik zu bekommen.

c) Erfassung des beträchtlichen Untergrunds

Der Untergrund bei der Flugzeitmethode wurde bereits im Abschnitt 1 erwähnt. Die gestreuten Neutronen sind schwer zu erfassen. Der Meßeffekt ist klein. Der Untergrund bei der Arbeit von Kurov et al. /5/ wurde erheblich gegenüber den ersten Messungen /4/ reduziert und betrug trotzdem noch 30~50%. Der kleine Untergrund beim Bremszeitspektrometer ist bekannt, er nimmt etwas mit der Neutronenenergie zu. Wie im Abschnitt 4.3.2 gezeigt, beträgt der Untergrund 6% bei 0.2 keV und 40% bei 12.76 keV. Der Effekt von gestreuten Neutronen im Zählrohr ist vernachlässigbar (Abschnitt 5.4).

d) Selbstabschirmungseffekte

Der Selbstabschirmungseffekt mußte wegen der Dicke der Proben in dieser Arbeit berücksichtigt werden. Dieser Effekt ist beispielsweise in der Abb.15 dargestellt. Die dickste Uranprobe ( $17.84 \cdot 10^{20}$  Atome/cm<sup>2</sup>) hat einen Selbstabschirmungseffekt von 34% bei  $E_n=0.2$  keV und 18% bei  $E_n=1.04$  keV. Bei hohen Neutronenenergien nimmt der Selbstabschirmungseffekt weiter ab.

e) Falsche Voraussetzungen

Die hier beschriebene Meßmethode beruht wesentlich auf der Annahme, daß die mittlere prompte Gammaenergie pro Spaltung,  $E_f$ , unabhängig von der Neutronenenergie ist. Einige Experimentatoren haben jedoch für <sup>239</sup>Pu Schwankungen um bis zu 5% in der mittleren Anzahl von Spaltneutronen und damit einhergehend auch Schwankungen in der mittleren prompten Gamma-Energie festgestellt /43/. Sollten sich diese Ergebnisse auch für <sup>235</sup>U bestätigen, so wäre die vorliegende Messung zumindest in den Resonanzen mit systematischen Fehlern behaftet. In den recht breiten Energiegruppen der Messung sollte der dadurch verursachte Fehler der gemittelten  $\alpha$ -Werte jedoch klein bleiben.

Ein Vergleich mit ausgewerteten Querschnittssätzen ist in Abb.19 dargestellt, in der die ENDF/B III/44/, KEDAK /45/ und KFKINR /46/ Daten eingetragen sind. Im Energiebereich oberhalb 0.5 keV stimmen die  $\alpha(E)$ -Werte dieser Arbeit mit den ENDF/B III Daten sehr gut überein. Unterhalb 0.5 keV liegen die Ergebnisse dieser Arbeit jedoch systematisch höher. Unterhalb 2 keV liegen die  $\alpha$ -Werte dieser Arbeit auch höher als beim KFKINR-Satz. Die Auswirkung der  $\alpha$ -Werte dieser Arbeit auf die Kritikalität einiger Reaktoren wurde mit Hilfe einer nulldimensionalen homogenen Rechnung ermittelt.

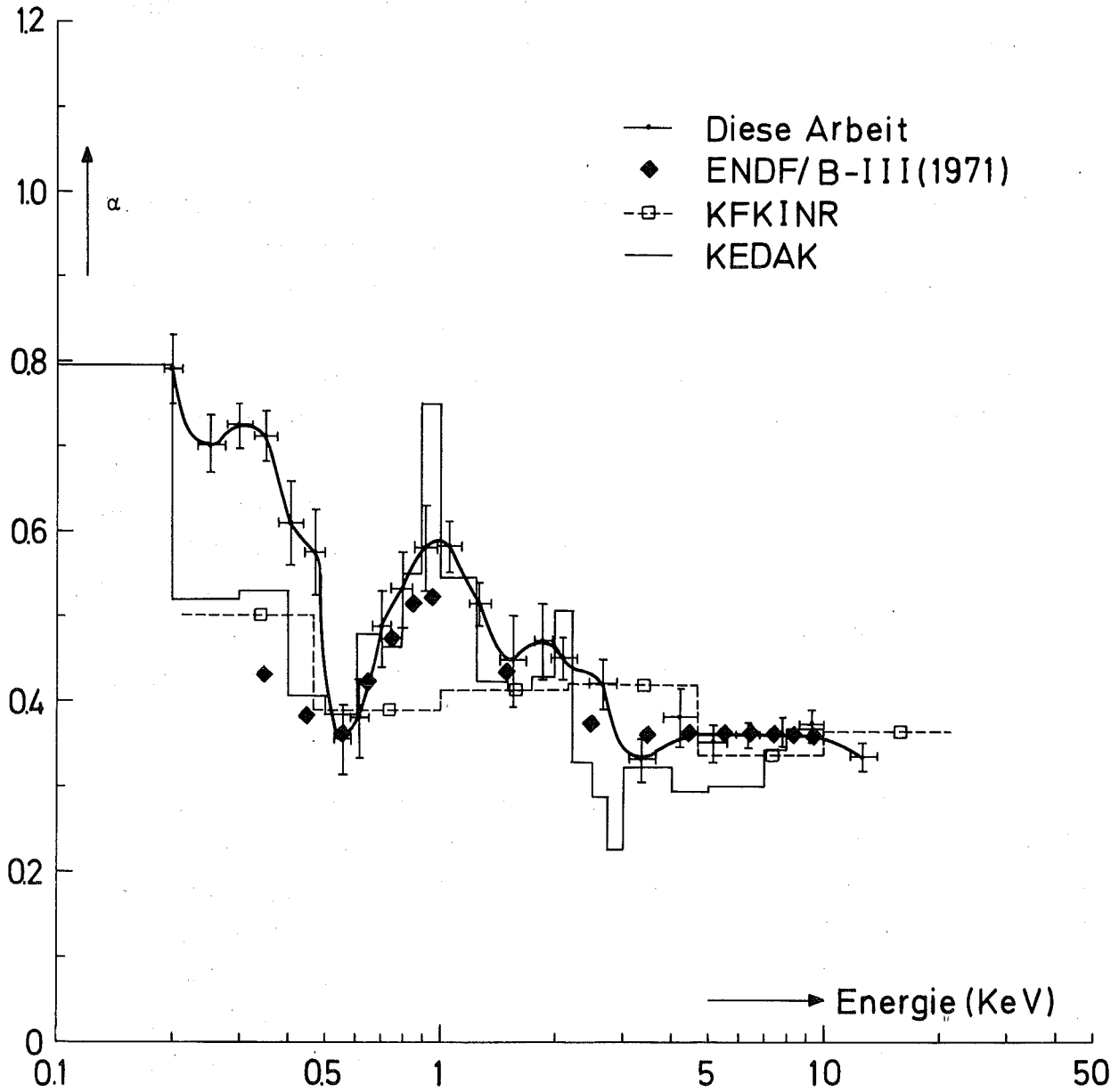


Abb.19 Vergleich der hier gemessenen  $\alpha$ -Werte von U-235 mit Werten aus verschiedenen Datensätzen.



Eine wesentliche Änderung von  $k_{\text{eff}}$  ist nur bei Reaktoren mit sehr weichem Spektrum zu erwarten, z.B. bei schnellen Reaktoren mit Dampfkühlung. Einen Einfluß auf  $k_{\text{eff}}$  haben die  $\alpha$ -Werte auch bei gasgekühlten schnellen Reaktoren in Unfallsituationen mit ins Core eindringendem Wasserdampf.

Das Verhältnis der gerechneten und gemessenen Reaktivitäten für die SNEAK-3A-Serie in Abhängigkeit von der Dampfdichte ist in Abb.20 dargestellt /47/. Die neuen  $\alpha$ -Werte führen zu einer etwas schlechteren Übereinstimmung mit dem Experiment als der KFKINR-Satz. Dies ist jedoch kein entscheidendes Kriterium für die Richtigkeit oder Nicht-Richtigkeit der Daten, da sich durchaus verschiedene Fehler in den Querschnittsdaten gegenseitig kompensieren können.

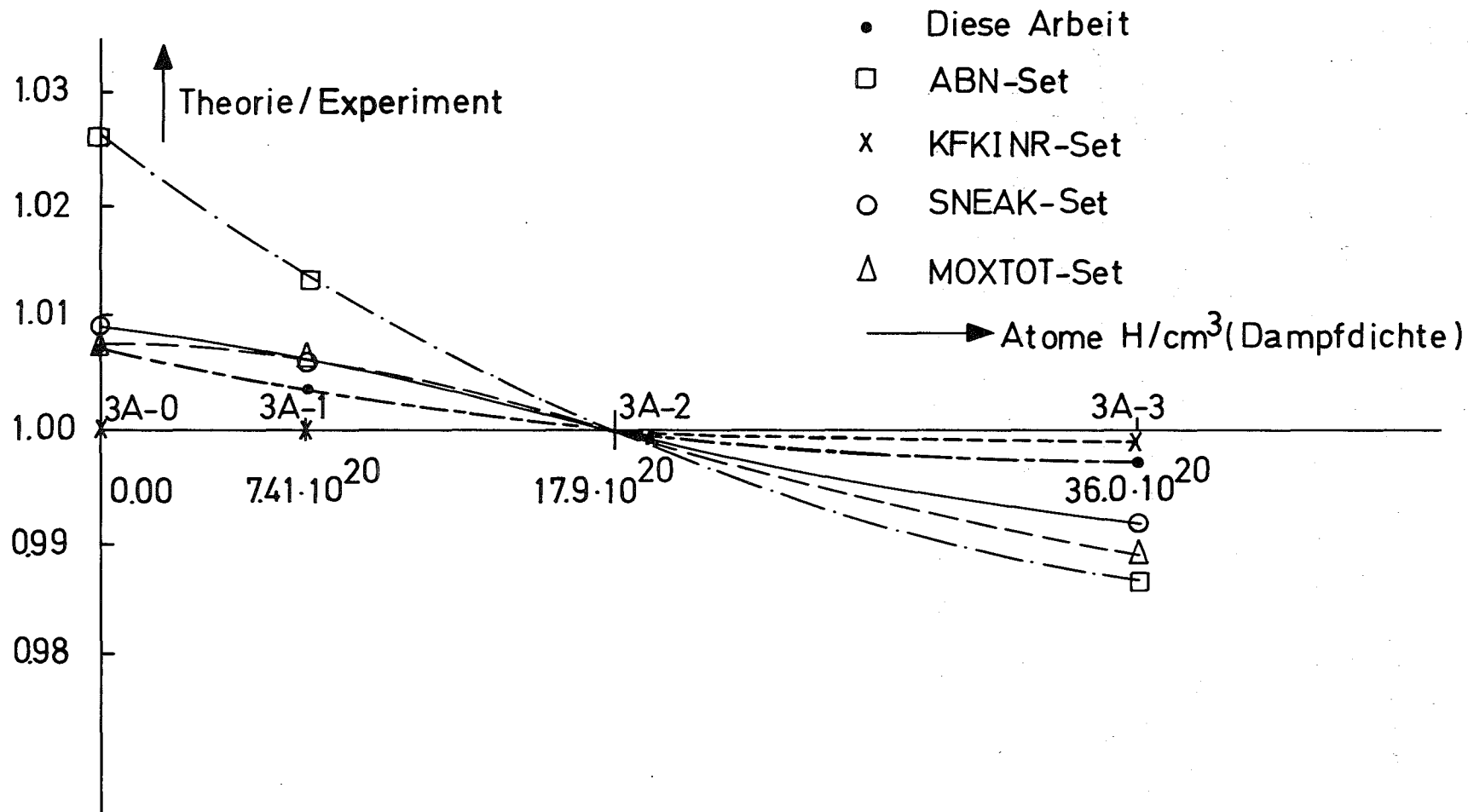


Abb.20 Abhängigkeit der Reaktivität von der Dampfdichte bei fester Geometrie, Normierung:  $k_{\text{eff}}(\text{SNEAK-3A2})=1$ .

## 7. Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden die Verhältnisse der Wirkungsquerschnitte von  $^{235}\text{U}$  für Einfang und Spaltung im Energiebereich von 200 eV bis 20 keV mit dem Bremszeitspektrometer gemessen. Gegenüber der Flugzeitmethode hat das Bremszeitspektrometer viele Vorteile, vor allem eine höhere Neutronenintensität und einen kleineren Untergrund. Seine Energieauflösung von  $\sim 35\%$  reicht für die Gewinnung von Gruppenkonstanten für die Berechnung schneller Reaktoren völlig aus.

Das Prinzip dieses Experiments ist die Anwendung einer  $^{235}\text{U}$ -Spaltkammer und eines Gammaproportionalzählrohrs mit  $^{235}\text{U}$ -Probe. Die Spaltkammer registriert Spaltereignisse und das Gammazählrohr registriert sowohl Spaltereignisse als auch Einfangereignisse.

Eine sorgfältige Eichmessung des Zählrohrs konnte an der thermischen Säule des STARK durchgeführt werden. Dabei wurden die genau bekannten thermischen Querschnitte verwendet.

Bei der Auswertung der  $\alpha$ -Werte wurden sämtliche denkbaren Korrekturen sorgfältig betrachtet. Der Selbstabschirmungseffekt in den Proben wurde bis zur Neutronenenergie von 6 keV berücksichtigt und die experimentellen Ergebnisse wurden zusätzlich mit Monte-Carlo-Rechnungen verglichen.

Die gewonnenen  $\alpha$ -Werte von  $^{235}\text{U}$  besitzen einen mittleren Fehler von 13% bis 20%. Auf Grund der Fehlerfortpflanzung resultieren etwa 80% des gesamten Fehlers aus Unsicherheiten in den Eichfaktoren.

Literaturverzeichnis

- /1/ Hanna, G.C.  
Fission data and nuclear technology:  
Physics and Chemistry of Fission, Vol.I, IAEA Proc.  
of the Salzburg Symposium (1965), S. 621
- /2/ Blokhin, G.E. et al.  
A fast neutron pulse reactor;  
Sov.Journal of Atomic Energy, 10 (1960) S.430
- /3/ Van, Shi-Di et al.  
Interaction of neutrons with  $^{235}\text{U}$  nuclei at an  
energy 0.02-30 keV;  
Physics and Chemistry of Fission, Vol.I, IAEA Proc.  
of the Salzburg Symposium (1965), S. 287
- /4/ Ryabov, Yu.V. et al.  
Measured ratio of radiative capture and fission  
cross sections of  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  in the resonance  
region;  
Sov.Journal of Atomic Energy, 24 (1968), S.435
- /5/ Kurov, M.A., Yu.V. Ryabov et al.  
Messungen des Verhältnisses vom Einfang- zu Spalt-  
querschnitt ( $\alpha$ ) für  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  im Neutronen-  
energiebereich unterhalb 30 keV;  
Nuclear Data for Reactors, Vol.I, IAEA Proc.,  
Helsinki (1970), S.345
- /6/ de Saussure, G., L.W. Weston et al.  
Measurement of the neutron capture and fission  
cross-sections and their ratio  $\alpha$  for  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$   
and  $^{239}\text{Pu}$ ;  
Nuclear Data for Reactors, Vol.II, IAEA Proc.,  
Paris (1966), S.233
- /7/ Kononov, V.N. et al.  
Absolute measurements of  $\alpha$  for  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$   
in the 10 keV - 1 MeV neutron energy range;  
INDC(CCP)-21/L, FEI-274 (1969)
- /8/ Diven, B.C. et al.  
Capture-to-fission ratios for fast neutrons in  $^{235}\text{U}$ ;  
Phys.Rev. 109, 1(1958), S.144
- /9/ Perez, R.B., G.de Saussure et al.  
Simultaneous measurements of the neutron fission  
and capture cross sections for uranium-235 for neutron  
energies from 8 eV to 10 keV;  
Nucl.Sci. and Eng. 52 (1973), S.46

- /10/ de Saussure, G., L.W. Weston et al.  
Measurement of the  $^{235}\text{U}$  neutron capture-to-fission ratio,  $\alpha$ , for incident neutron energies from 3.25 eV to 1.8 keV;  
Nucl.Sci and Eng. 23 (1965), S.45
- /11/ Bergman, A.A. et al.  
A neutron spectrometer based on measuring the slowing-down time of neutrons in lead;  
Proc. First Intern. Conf. Peaceful Uses At.Energy, 4(1955), S.135
- /12/ Mitzel, F. et al.  
Messungen von  $(n,\gamma)$ -Wirkungsquerschnitten und Resonanzintegralen mit einem Bleispektrometer;  
Nukleonik 6, 8 (1964), S. 371
- /13/ Chou, Y.C., H. Werle  
 $(n,\gamma)$ -cross-section measurements of  $^{99}\text{Tc}$ , Eu, Sm and Fe in the energy range 1 eV to 50 keV with a slowing-down time spectrometer;  
Journal of Nuclear Energy, 27 (1973) S.811
- /14/ Kashukeev, N.T., Y.P.Popov, F.L.Shapiro  
Measurement of the energy dependence of the cross section of the  $\text{Cl}(n,\gamma)$ -reaction;  
Journal of Nuclear Energy, 14 (1961), S.76
- /15/ Popov, Y.P., F.L.Shapiro  
Energy dependence of cross section of  $(n,\gamma)$ -reactions on a number of odd-Z nuclei;  
Sov.Phys. JETP, 15/4 (1962), S.683
- /16/ Popov, Y.P. et al.  
Analysis of averaged cross sections for neutron capture;  
Sov.Phys. JETP, 16 (1963), S.6
- /17/ Bergman, A.A. et al.  
Bremsung gepulster Neutronen und Neutronenspektrometrie mit dem Bremszeitspektrometer;  
STI/PUB/104 (Vol.1) (1966), S.671
- /18/ Chandramoleshwar, K. et al.  
Study of neutron resonance parameters using slowing down time lead spectrometer;  
AEE, Trombay, CONF-660221 (1965), S.273
- /19/ Samsonov, A.E.  
Measurement of fission cross sections of  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  in a neutron spectrometer by means of the moderation time;  
Sov.Journal of Atomic Energy, 31 (1971), S.809

- /20/ Romanov, S.A., F.L.Shapiro  
Neutron-capture cross sections in scandium and the  
radiation widths of the  $^{45}\text{Sc}$  and  $^{35}\text{Cl}$  resonances;  
Sov.Journal of Nuclear Physics, 1, 2 (1965), S.159
- /21/ Klunker, J.  
Spaltstoffbestimmung an Reaktorbrennstäben mit dem  
Bremszeitspektrometer;  
KFK-1879 (1973)
- /22/ Krinninger, H. et al.  
Pulsed neutron method for the nondestructive and  
simultaneous determination of the U-235 and Pu-239  
contents of irradiated reactor fuel elements;  
Nucl.Inst. Methods, 73 (1969), S.13
- /23/ Stegemann, D. und H. Seufert  
Application of the slowing down spectrometer for  
the control of fissionable material;  
Trans.Am.Nucl.Soc., 11 (1968), S.658
- /24/ Baumung, K., K.Böhnel, J.Klunker- M.Küchle und J.Wolff  
Some investigations on nondestructive safeguards  
techniques;  
Proc. IAEA Symp. Safeguards Techniques, Karlsruhe(1970),  
IAEA-SM-133/90, Vol.II, S.177
- /25/ Küchle, M., E.Ruppert, H.Krinninger und V.W.Schneider  
Slowing down spectrometer and calorimetry techniques  
for safeguards;  
Trans.Am.Nucl.Soc. 14 (1971), S.114
- /26/ Beckurts, K.H., K.Wirtz  
Neutron Physics;  
Springer-Verlag, Berlin (1964)
- /27/ Cazarnovsky, M.V.  
Energy distribution of neutrons obtained by a pulsed  
source and slowed down in a heavy medium;  
in /11/ S. 143
- /28/ Williams, M.M.R.  
The effect of chemical binding and thermal motion  
on a pulse of slowing down neutrons;  
Nucl.Sci. and Eng. 19 (1964), S.221
- /29/ Bergman, A.A. et al.  
Ratio of neutron cross sections of radiative capture  
and fission for  $^{239}\text{Pu}$  in the energy region below  
 $\sim 50$  keV;  
Sov. Journal of Nuclear Physics, 14, 6(1972), S.625

- /30/ Moxon, M.C., E.R.Rae  
A Gamma-ray detector for neutron capture cross-section measurements;  
Nucl.Inst. Methods, 24 (1963), S.445
- /31/ Snidow, N.L., H.D. Warren  
Wall effect correction in proportional counter spectrometers  
Nucl.Inst.Methods, 51 (1967), S.109
- /32/ Stavisskii, Yu Ya. et al.  
Neutron radiative capture cross sections in silver,  $^{197}\text{Au}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and  $^{238}\text{U}$ ;  
Sov.Journal of Atomic Energy, 31 (1971) S.814
- /33/ Singh, B.P., H.C. Evans  
Relative efficiency of Ge(Li) gamma-ray detectors from 0.5 to 12 MeV;  
Nucl.Inst.Methods, 97 (1971), S.475
- /34/ Kuhn, D.  
persönliche Mitteilung (1974)
- /35/ Wapstra, A.H., N.B. Gave  
The 1971 atomic mass evaluation  
Nuclear Data Tables, Vol.9 (1971), S.268
- /36/ Peelle, R.W., F.C. Maienschein  
Prompt gamma rays from thermal neutron fission of uranium-235;  
Nucl.Sci. and Eng. 40(1970), S.485
- /37/ Hänsel, H.  
Grundzüge der Fehlerrechnung;  
VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin(1967)
- /38/ Weinberg, A.M., E.P.Wigner  
The physical theory of neutron chain reactors;  
Chicago University Press (1958), S.108
- /39/ Wigner, E.P. et al.  
Resonance absorption of neutrons by spheres;  
J.of Appl.Phys. 26 (1954), S.260
- /40/ Arnecke, G., H.Borgwaldt, V.Brandl und M.Lalovic  
Kurzbeschreibung des Karlsruher Monte-Carlo-Codes KAMCCO mit Eingabebeschreibung;  
persönliche Mitteilung (1971)
- /41/ Groshev, L.V. et al.  
Atlas of  $\gamma$ -ray spectra from radiative capture of thermal neutrons;  
Pergamon Press (1959), S.180

- /42/ Hanna, G.C., C.H. Westcott et al.  
Revision of values for the 2200 m/sec neutron constants for four fissile nuclides ( $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ );  
Atomic Energy Rev. 7, Vienna (1969), S.4
- /43/ Frehaut, J., M.LeBars  
Prompt neutron and gamma-ray yields in fission induced in  $^{239}\text{Pu}$  by resonance neutrons: existence of the  $(n, \gamma f)$  reaction;  
Physics Letters, Vol. 42B, 3(1972), S.344
- /44/ Wright, R.Q. et al.  
ENDF/BIII, Material 1157;  
Sigma Center, Brookhaven National Laboratory, August (1971)
- /45/ Weller, F.  
persönliche Mitteilung (1975)
- /46/ Kiefhaber, E.  
persönliche Mitteilung (1975)
- /47/ Kiefhaber, E.  
Fortschritte bei der Verbesserung der Gruppenkonstanten im Vergleich mit Ergebnissen integraler Experimente;  
KFK 1271/1 (1971)
- /48/ Kiefhaber, E.  
persönliche Mitteilung (1975)
- /49/ Goldberg, M.D. et al.  
Neutron cross sections,  
Suppl. 2 to BNL-325, 2nd ed. (1966)
- /50/ Peelle, R.W. et al.  
Pile Neutron Research in Physics;  
International Atomic Energy Agency, Vienna (1962), S.273
- /51/ Maienschein, F.C. et al.  
Proc. Second U.N. Intern. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy, Geneva, 15 (1958) S. 366



A n h a n g

Berechnung der Abhängigkeit der Reaktionsraten von der Foliendicke bei thermischer Neutronenenergie

---

Für die Extrapolation der in 4.2.2 beschriebenen Eichmessungen mit thermischen Neutronen wurden einfache geometrische Rechnungen benutzt. Bei diesen Rechnungen wurde die elastische Streuung in den Folien und im Zählrohrkörper (Aluminium) vernachlässigt. Wie in der Abb. (A.1.1) gezeigt, befindet sich die zylindrische Probe der Dicke  $(r_3 - r_2)$  in einem Neutronenstrahl der senkrecht, zur Zählrohrachse gerichtet ist. Die Zählrohrwand hat die Dicke  $(r_2 - r_1)$ .

Entsprechend den geometrischen Verhältnissen mußte der Zylinder in mehrere Zonen unterteilt werden. Die Reaktionsrate in der Zone 1 wurde wie folgt berechnet:

$$\phi(x,y) = \phi_0 e^{-\Sigma_F |\sqrt{r_3^2 - y^2} - x|} \quad (\text{A.1.1})$$

$$Z_1 \sim \Sigma_F \phi_0 \int_0^{r_2} \int_{-\sqrt{r_3^2 - y^2}}^{-\sqrt{r_2^2 - y^2}} e^{-\Sigma_F |\sqrt{r_3^2 - y^2} - x|} dx dy$$

$$\sim \int_0^{r_2} \int_{-\sqrt{r_3^2 - y^2}}^{-\sqrt{r_2^2 - y^2}} e^{-\Sigma_F |\sqrt{r_3^2 - y^2} - x|} dx dy$$

$$\sim \int_0^{r_2} \left[ 1 - e^{-\Sigma_F (\sqrt{r_3^2 - y^2} - \sqrt{r_2^2 - y^2})} \right] dy \quad (\text{A.1.2})$$

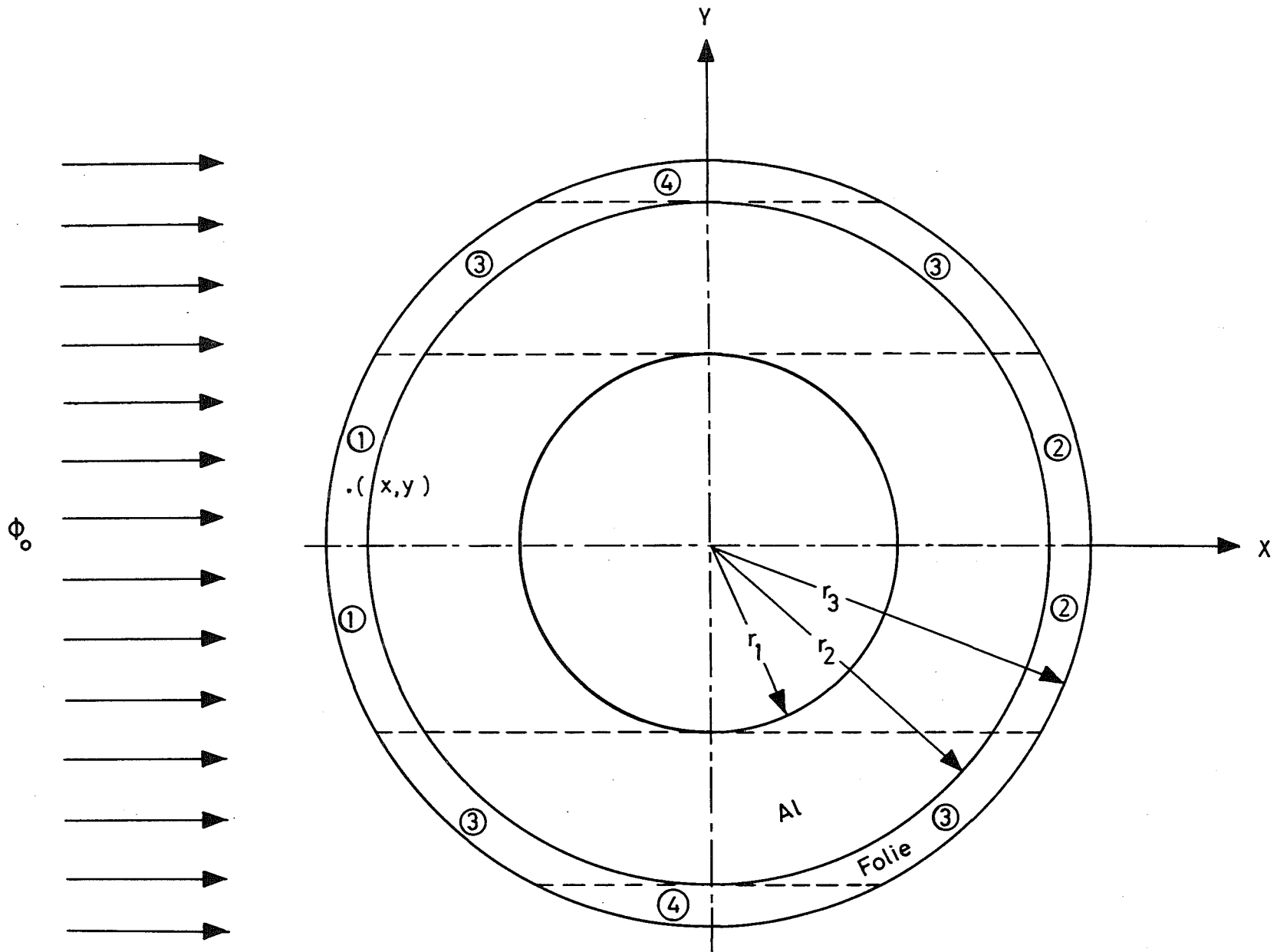


Abb.A.1.1: Anordnung für die Rechnung der Abhängigkeit der Reaktionsraten von der Foliendicke bei thermischer Neutronenenergie.

In der gleichen Art und Weise bekommt man die Reaktionsraten für die weiteren Zonen:

$$z_2 \sim \int_0^{r_1} e^{-\{\Sigma_F(\sqrt{r_3^2-y^2} - \sqrt{r_2^2-y^2}) + 2\Sigma_{Al}(\sqrt{r_2^2-y^2} - \sqrt{r_1^2-y^2})\}} \left[ 1 - e^{-\Sigma_F(\sqrt{r_3^2-y^2} - \sqrt{r_2^2-y^2})} \right] dy \quad (\text{A.1.3})$$

$$z_3 \sim \int_{r_1}^{r_2} e^{-\{\Sigma_F(\sqrt{r_3^2-y^2} - \sqrt{r_2^2-y^2}) + 2\Sigma_{Al}\sqrt{r_2^2-y^2}\}} \left[ 1 - e^{-\Sigma_F(\sqrt{r_3^2-y^2} - \sqrt{r_2^2-y^2})} \right] dy \quad (\text{A.1.3})$$

$$z_4 \sim \int_{r_2}^{r_3} \left[ 1 - e^{-2\Sigma_F\sqrt{r_3^2-y^2}} \right] dy \quad (\text{A.1.4})$$

Die gesamte Reaktionsrate ist dann

$$Z \sim (Z_1 + Z_2 + Z_3 + Z_4) \quad (\text{A.1.5})$$

Dabei sind

$\Sigma_F$  = makroskopischer Absorptionsquerschnitt der Folie

$\Sigma_{Al}$  = makroskopischer Absorptionsquerschnitt des Al

$\phi(x,y)$  = Neutronenfluß bei der Koordinate (x,y)

Die Reaktionsrate der Folie wird numerisch für verschiedene Dicken berechnet.