

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

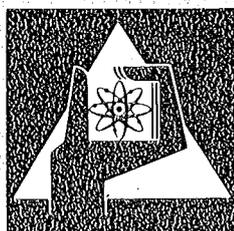
November 1975

KFK 2211

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik  
Projekt Schneller Brüter

**Messung der Energieverteilung der Gammastrahlung  
in einem schnellen Brüter**

H.E. Korn



**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 2211

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Projekt Schneller Brüter

Messung der Energieverteilung der Gammastrahlung  
in einem schnellen Brüter

H. E. Korn

Diplomarbeit, Fakultät für Physik  
Universität Karlsruhe (1975)

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H, Karlsruhe



## Zusammenfassung

Mit Hilfe von Si(Li)-Halbleiterdetektoren wurde, über das damit registrierte Compton-Elektronen-Spektrum, die Energieverteilung der Gammastrahlung in der Schnellen Nulleistungs-Anordnung Karlsruhe SNEAK gemessen. Das Meßverfahren wurde getestet, indem gemessene  $\gamma$ -Schwächungskoeffizienten verschiedener Materialien mit bekannten Literaturwerten verglichen wurden. Gemessen wurden die  $\gamma$ -Spektren von zwei Anordnungen mit Na-Brüter ähnlicher Zusammensetzung, einem Urancore und einem Plutoniumcore und zwar sowohl im Core als auch im Blanket. Außerdem wurde das durch 14 MeV-Neutronen in einer Li-Kugel hervorgerufene  $\gamma$ -Spektrum bestimmt.

## Abstract

### Measurement of the energy distribution of the gamma field in a fast reactor.

Si(Li) semiconductor detectors were used to measure the energy distribution of the gamma field in the fast zero-power facility Karlsruhe SNEAK with the help of Compton electron spectrum registered with the detectors. The method was checked by comparing measured  $\gamma$ -attenuation coefficients of different materials with the values known from literature. The spectra of two assemblies (one with uranium, the other with plutonium fuel) with compositions similar to fast sodium cooled breeder reactors were measured in the core and in the blanket. In addition the  $\gamma$ -spectrum in a lithium sphere induced by 14 MeV neutrons was determined.

## Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Das $\gamma$ -Strahlungsfeld in schnellen Reaktoren	3
2.1 $\gamma$ -Quellen im Reaktor	3
2.2 Wechselwirkungs- und Transportprozesse	11
3. Meßmethode	14
3.1 Meßprinzip	14
3.2 Das Si(Li)-Halbleiter-Spektrometer	19
3.3 Berechnung des $\gamma$ -Spektrums aus der gemessenen Impulshöhenverteilung mittels des Programms SPEC 4C	20
3.4 Untergrund-Reaktionen	21
4. Experimentelle Bestimmung der Antwort-Funktionen	24
4.1 Schwierigkeiten bei der Bestimmung der Ant- wort-Funktionen	24
4.2 Eichung der $\gamma$ -Quellen mit einem Ge(Li)-Detektor und Bestimmung der Antwort-Funktionen	25
5. Testmessungen mit einer Radium-Quelle	30
6. Messungen in SNEAK	32
6.1 Die Anordnungen SNEAK 9C-1 und 9C-2	32
6.2 Messungen und Ergebnisse	32
6.3 Diskussion der Meßergebnisse	35
7. Messungen in einer Lithium-Kugel	40
8. Zusammenfassung	42
Literaturverzeichnis	44
Abbildungen	46

## 1. Einleitung

Eine möglichst genaue Kenntnis des  $\gamma$ -Strahlungsfeldes ist sowohl für die Auslegung als auch für den Betrieb von Kernreaktoren von großer Bedeutung. Zunächst stellt die durch  $\gamma$ -Strahlung erzeugte Leistung einen nicht unerheblichen Anteil an der gesamten Reaktorleistung dar (ca. 10%) [1]. Sie ist daher mitbestimmend für die räumliche Verteilung der Leistungsdichte und muß bei der thermohydraulischen Auslegung des Reaktors berücksichtigt werden.

Für die Messung der integralen  $\gamma$ -Intensität in schnellen Reaktoren gibt es geeignete Detektoren. Um jedoch aus den damit gewonnenen Meßwerten die in bestimmten Reaktormaterialien erzeugte  $\gamma$ -Heizung berechnen zu können, muß die Energieverteilung der  $\gamma$ -Strahlung wenigstens näherungsweise bekannt sein. Auch für die Auslegung der biologischen Abschirmung ist die Energieverteilung des  $\gamma$ -Feldes von Bedeutung. Darüberhinaus hat die  $\gamma$ -Energieverteilung einen Einfluß auf die Art und das Ausmaß der Strahlenschäden von Reaktorwerkstoffen.

Die Berechnung des  $\gamma$ -Spektrums in Reaktoren ist schwierig. Das hat folgende Gründe:

1. Zur  $\gamma$ -Produktion trägt eine Vielzahl verschiedener Prozesse bei.
2. Die Spektren dieser Einzelprozesse sind zum Teil sehr kompliziert und auch nicht vollständig bekannt.
3. Es muß die Wechselwirkung der primär entstehenden  $\gamma$ 's mit der Umgebung betrachtet werden.
4. Im allgemeinen muß auch der räumliche Transport der  $\gamma$ -Quanten berücksichtigt werden.

Man ist daher, zumindest zur Verifizierung gerechneter  $\gamma$ -Spektren, auf Messungen angewiesen. Bisher gibt es nur

wenige in den USA und in Großbritannien durchgeführte Messungen der  $\gamma$ -Energieverteilung in (schnellen) Nulleistungs-Reaktoren [2,3]. Da jedoch die Energieverteilung von Anordnung zu Anordnung verschieden ist, sollte an einigen für den SNR 300 repräsentativen SNEAK-Anordnungen das  $\gamma$ -Spektrum sowohl im Core als auch im Brut-Blanket gemessen werden.

Bei der Auswahl eines für den Einsatz in einer schnellen Nullenergie-Anordnung geeigneten  $\gamma$ -Spektrometers spielen u.a. folgende Gesichtspunkte eine Rolle:

1. Meßbarer Energiebereich
2. Größe des Detektors
3. Empfindlichkeit gegenüber schnellen Neutronen

Unter Berücksichtigung dieser Gesichtspunkte ist das hier benutzte Si(Li)-Halbleiter-Compton-Spektrometer für solche Messungen besonders geeignet.

## 2. Das $\gamma$ -Strahlungsfeld in schnellen Reaktoren

Das  $\gamma$ -Strahlungsfeld in schnellen Reaktoren wird hervorgerufen durch Wechselwirkungsprozesse der Neutronen mit dem Brennstoff und den anderen Reaktormaterialien. Das Spektrum der primären  $\gamma$ 's ist sehr kompliziert, da eine Reihe verschiedener Prozesse zur Produktion von  $\gamma$ -Quanten beiträgt. Die Energieverteilung des  $\gamma$ -Strahlungsfeldes, welches sich im Reaktor aufbaut, hängt von der Energieverteilung dieser primär erzeugten  $\gamma$ 's und von deren Wechselwirkung mit den Reaktormaterialien ab.

Im folgenden soll zunächst auf die verschiedenen  $\gamma$ -Quellen im Reaktor sowie auf die Energieverteilung dieser primär entstehenden  $\gamma$ 's und schließlich auf deren Wechselwirkungsmöglichkeiten mit den Reaktormaterialien eingegangen werden.

### 2.1 $\gamma$ -Quellen im Reaktor

Den Hauptbeitrag zum Strahlungsfeld im Core schneller Reaktoren liefern die "prompten" und "verzögerten"  $\gamma$ -Strahlen, die bei der Kernspaltung entstehen. Dazu kommen  $\gamma$ 's aus aktivierten Kernen und  $\gamma$ -Strahlen, die aufgrund von Neutroneneinfang-Reaktionen oder bei inelastischer Neutronen-Streuung entstehen. Im Brutmantel (Blanket), wo sehr viel weniger Spaltungen stattfinden, liefern  $\gamma$ 's aus Einfang- und inelastischen Streuprozessen den Hauptanteil des Strahlungsfeldes.

#### 2.1.1 Prompte Spalt- $\gamma$ -Strahlung

Nach der Spaltung eines Atomkernes haben die Spaltbruchstücke sehr hohe Anregungsenergien, die ausreichen, den relativen Neutronenüberschuß durch Emission von Neutronen auszugleichen. Diese "prompten" Neutronen treten innerhalb von  $\sim 10^{-17}$  sec nach der Spaltung auf. Die noch verbleibenden tiefer liegenden Anregungszustände zerfallen durch  $\gamma$ -Emission (Kaskaden) in den Grundzustand. Die in Zeitintervallen bis  $\sim 10^{-8}$  sec nach der

Spaltung emittierten  $\gamma$ 's werden entsprechend als "prompte"  $\gamma$ -Strahlung bezeichnet.

Das von F.C. MAIENSCHEN (1958) gemessene prompte  $\gamma$ -Spektrum für die  $^{235}\text{U}$ -Spaltung zeigt Abb.1 [4] für den Energiebereich zwischen 0.3 und 7.3 MeV. Zwischen 1 und 7 MeV kann die Verteilung näherungsweise durch

$$n_p(E) = 8.0 \cdot e^{-1.1E} \left[ \frac{\gamma's}{\text{MeV} \cdot \text{Spaltung}} \right] \quad (1)$$

beschrieben werden. Zwischen 1 und 4.5 MeV weichen die Meßwerte bis zu  $\pm 15\%$ , außerhalb dieses Bereiches bis zu  $\pm 40\%$  von dieser Anpassungskurve ab.

Aufgrund späterer experimenteller Untersuchungen können folgende Aussagen gemacht werden:

Zwischen 8 keV und 10.5 MeV entstehen pro Spaltung (eines  $^{235}\text{U}$ -Kernes)  $10.3 \pm 1.1$  prompte  $\gamma$ -Quanten (bis etwa  $5 \cdot 10^{-8}$  sec nach der Spaltung); deren totale Energie beträgt  $7.9 \pm 0.9$  MeV [5].

Eine bessere Auflösung des unteren Energiebereiches zeigt Abb.2 [6].

Unterhalb 1 MeV werden die experimentellen Ergebnisse gut durch

$$n_p(E) = 26.8 \cdot e^{-2.3E} \left[ \frac{\gamma's}{\text{MeV} \cdot \text{Spaltung}} \right] \quad (2)$$

wiedergegeben [5].

In Tabelle 1 ist die Verteilung der prompten Spaltgammas, in Energiegruppen unterteilt, dargestellt.

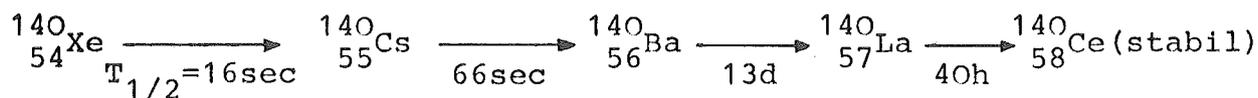
Nach [6] sind die prompten  $\gamma$ -Spektren, die bei der Spaltung von  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{233}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  (schnelle Spaltung) auftreten, weitgehend identisch mit dem  $^{235}\text{U}$ -Spektrum. Sogar für das spontan-spaltende Nuklid  $^{252}\text{Cf}$  läßt sich kein wesentlicher Unterschied feststellen.

Tabelle 1 Energieverteilung der prompten  $^{235}\text{U}$ -Spaltgammas [6/

Energiebereich (MeV)	MeV/Spaltung
0 - 1	3.5
1 - 2	2.2
2 - 3	1.3
3 - 4	0.64
4 - 5	0.28
5 - 6	0.12
6 - 7	0.045
7 - 8	0.017
8 - 10	0.002
Summe	8.1

### 2.1.2 Verzögerte Spalt- $\gamma$ -Strahlung (Spaltprodukt- $\gamma$ -Strahlung)

Nach der Emission prompter Neutronen und prompter  $\gamma$ 's können sich die Kerne der Spaltfragmente noch in isomeren Zuständen befinden. Der Zerfall dieser isomeren Zustände erfolgt zwischen  $10^{-6}$  und  $10^{-3}$  sec nach der Spaltung. Ab etwa 0.1 sec nach der Spaltung wird der auch nach Aussendung prompter Neutronen noch vorhandene Neutronenüberschuß durch  $\beta$ -Zerfall der Spaltfragmente ausgeglichen. Die entstehenden Zerfallsprodukte sind meist ebenfalls radioaktiv. Es folgen im Mittel noch 3 bis 4 Zerfälle, bis ein wirklich stabiles Nuklid entstanden ist. Als Beispiel dafür sei folgende Zerfallskette ausgeführt:



Die  $\beta$ -Zerfälle führen meist nicht direkt in den Grundzustand, sondern in einen angeregten Zustand des Folgekerns, so daß die  $\beta$ -Zerfälle i.a. von mehreren  $\gamma$ -Emissionen begleitet werden.

Das Energiespektrum dieser Spaltprodukt- $\gamma$ 's ist natürlich stark

zeitabhängig. Andererseits werden aber etwa 75% aller Spaltprodukt- $\gamma$ 's innerhalb von etwa 1000 sec nach der Spaltung emittiert. Daher nähert sich ein in Betrieb gehender Reaktor hinsichtlich der  $\gamma$ -Produktion sehr schnell dem Gleichgewichtszustand, und die Spaltprodukt- $\gamma$ 's können dann als konstante Quelle angesehen werden.

Die Zeitabhängigkeit der Spaltprodukt- $\gamma$ 's ist in Abb.3 [5] und Abb.4 [6] dargestellt. 1000 sec nach der Spaltung ist die Intensität bereits um 3 bis 4 Größenordnungen abgefallen.

Die Zeitabhängigkeit der totalen (prompte + verzögerte) Spalt- $\gamma$ -Produktion läßt sich im Bereich von 20 sec bis 30 Tagen nach der Spaltung gemäß [6] durch

$$G_{\text{total}}(t) = 1.5 \cdot t^{-1.2} \text{ MeV/sec} \cdot \text{Spaltung} \quad (3)$$

beschreiben.

Die Energieverteilung der Spaltprodukt- $\gamma$ 's im Gleichgewichtszustand kann durch dieselbe Exponentialkurve beschrieben werden wie das prompte Spektrum [6]:

$$n_v(E) = 7.2 \cdot e^{-1.1E} \left[ \frac{\gamma's}{\text{MeV} \cdot \text{Spaltung}} \right] \quad (4)$$

Der konstante Faktor entspricht einer abgeschätzten totalen  $\gamma$ -Energie (verzögert) von

$$7 \pm 1 \text{ MeV/Spaltung}$$

wobei der Zeitraum bis etwa  $10^8$  sec ( $\sim 3$  Jahre) berücksichtigt wurde.

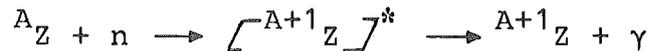
Damit ergeben der prompte und verzögerte Anteil zusammen ein Gleichgewichtsspektrum, das im Bereich zwischen 1 und 7 MeV näherungsweise durch

$$n_t(E) = 15.2 \cdot e^{-1.1E} \left[ \frac{\gamma's}{\text{MeV} \cdot \text{Spaltung}} \right] \quad (5)$$

beschrieben werden kann [5].

### 2.1.3 Strahlungseinfang

Absorbiert ein Kern ein Neutron, so entsteht ein angeregter Zwischenkern, dessen Anregungsenergie sich aus der Bindungsenergie und der kinetischen Energie, die das Neutron mitbringt, zusammensetzt. Die Überschussenergie wird innerhalb  $10^{-13}$  bis  $10^{-12}$  sec nach dem Einfang in Form eines oder mehrerer  $\gamma$ -Quanten abgegeben. Die Reaktionsgleichung lautet allgemein:



Strahlungseinfang erfolgt vornehmlich im Falle langsamer Neutronen. Für Neutronen-Energien oberhalb 10 keV wird der Einfangquerschnitt i. a. (abgesehen von Resonanzen) sehr klein. Die Bindungsenergien der Neutronen variieren zwischen 2.2 MeV bei Wasserstoff und 11 MeV bei Silizium. Im Mittel liegen sie bei 6 bis 7 MeV. Demzufolge liegt auch die in Form von  $\gamma$ -Quanten emittierte Energie in etwa diesem Bereich. Die Form der Einfang-Spektren reicht von einfachen Linienspektren bis zu kontinuierlichen Verteilungen. Sie ist im übrigen von der Energie der absorbierten Neutronen abhängig. Dies sei am Beispiel des Blei verdeutlicht. Absorbiert ein  ${}^{208}\text{Pb}$ -Kern ein thermisches Neutron, erfolgt ein direkter Übergang in den Grundzustand durch Emission eines 7.4 MeV- $\gamma$ -Quants [4]. Bei Absorption von 30-keV-Neutronen entsteht jedoch ein weichereres Spektrum mit mehreren diskreten Linien (Abb. 5 [5]).

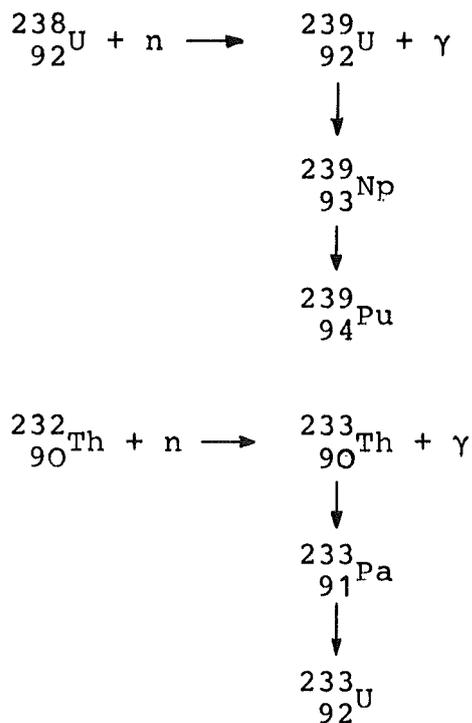
Ähnliche Unterschiede findet man auch bei Einfang in Resonanzen, weil die Übergänge aus verschiedenen Spin-Zuständen durch Auswahlregeln vorgeschrieben werden. Tabelle 2 zeigt für einige Materialien die beim thermischen Neutronen-Einfang emittierten Spektren.

Infolge einer Vergrößerung des Neutron-Proton-Verhältnisses nach Strahlungseinfang kann der Folgekern radioaktiv sein. Tabellen und Spektren von Einfang- $\gamma$ 's enthalten daher oft auch die  $\gamma$ -Anteile der (kurzlebigen) Radionuklide.

Tabelle 2  $\gamma$ -Spektren bei Einfang thermischer Neutronen  
 $[\bar{\gamma}'s/100 \text{ Einfänge}] [5]$

Target- kern	$\gamma$ -Energie (MeV)						
	0-1	1-2	2-3	3-5	5-7	7-9	> 9
Al	>236	195	69	62	19	19	0
Fe	> 75	60	27	23	25	38	2.1
Ni	> 84	40	23	23	34	62	0.8
Cu	> 68	47	26	30	27	43	0
Au	>100	69	33	68	38	0.1	0
Hg	> 94	122	55	86	41	0	0
Pb	0	0	0	0	7	93	0
U	254	178	91	34	0	0	4.062

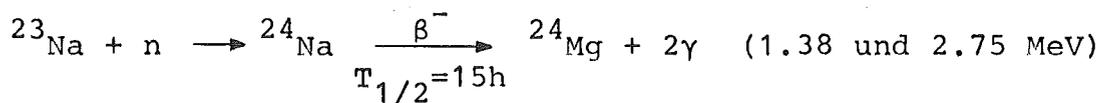
Besonders interessant und wichtig, weil schließlich zu einem neuen spaltbaren Kern führend, sind die beiden folgenden Einfangreaktionen, die auch als Brutprozesse bezeichnet werden:



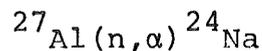
#### 2.1.4 Neutroneninduzierte Aktivität

Über die einfache  $(n, \gamma)$ -Reaktion hinaus besteht die Möglichkeit, daß es zu neutroneninduzierter Aktivität kommt. Wenn ein Kern ein Neutron absorbiert hat und die resultierende anfängliche Instabilität durch  $\gamma$ -Emission aufgehoben ist, kann der neue Kern noch radioaktiv sein und der nach dem Zerfallsprozeß ( $\beta$ -Zerfall) angeregte Tochterkern durch  $\gamma$ -Emission in den Grundzustand übergehen.

Beispielsweise wird Natrium bei Verwendung als Kühlmittel im Reaktor zu einer intensiven  $\gamma$ -Quelle durch Neutroneneinfang:



Zwar entsteht der Hauptanteil der Aktivierungs- $\gamma$ 's über  $(n, \gamma)$ -Reaktionen, doch sind auch Reaktionen vom Typ  $(n, p)$  oder  $(n, \alpha)$  zu beachten, deren Folgeprodukte ebenfalls als  $\gamma$ -Quellen in Frage kommen. So kann etwa  ${}^{24}_{\text{Na}}$  außer über die bereits genannte Reaktion auch über



entstehen.

#### 2.1.5 Inelastische Neutronen-Streuung

Bei der inelastischen Neutronen-Streuung wird ein von einem Kern eingefangenes Neutron nach Bildung eines Zwischenkerns mit verminderter Energie wieder emittiert. Die vom Neutron abgegebene Energie steht zur Anregung des Targetkerns zur Verfügung und wird schließlich in Form von einem oder mehreren  $\gamma$ -Quanten frei, wenn der angeregte Kern in den Grundzustand übergeht ( $\sim 10^{-14}$  sec nach der Streuung). Bei der inelastischen n-Streuung handelt es sich um eine Schwellenreaktion. Sei  $E_1$  die Energie des ersten angeregten Zustands, so beträgt die Schwellenenergie  $E_s$  des Neutrons, ab welcher dieser Zustand angeregt werden kann:

$$E_s = \frac{A+1}{A} \cdot E_1, \quad A = \text{Massenzahl des Targetkerns}$$

Für den Fall der inelastischen Streuung an  $^{238}\text{U}$  zeigt Abb.6 den Verlauf der Wirkungsquerschnitte für die verschiedenen Anregungszustände sowie den totalen Querschnitt in Abhängigkeit von der Neutronenenergie [5].

#### 2.1.6 Vernichtungs- und Bremsstrahlung

Der Vollständigkeit halber seien schließlich noch zwei weitere  $\gamma$ -Quellen erwähnt: Vernichtungs- und Bremsstrahlung.

Bei der Zerstrahlung eines Elektron-Positron-Paares werden zwei  $\gamma$ -Quanten von je 0.511 MeV Energie (entsprechend der Ruhmasse der Teilchen) frei. Neutronenreaktionen oder Spaltung führen im Reaktor vielfach - wie oben beschrieben - zu Kernen, die einen Neutronenüberschuß aufweisen und daher durch Elektronenemission zerfallen. Als Positronenstrahler kommen im Reaktor in größerem Umfang nur die Nuklide  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Cu}$  und  $^{65}\text{Zn}$  als Aktivierungsprodukte in den Strukturmaterialien in Betracht.

Als letzte  $\gamma$ -Quelle sei noch die Bremsstrahlung erwähnt. Werden Elektronen im elektrischen Feld von Atomkernen abgebremst, kommt es zur Ausstrahlung eines kontinuierlichen Bremsstrahlungsspektrums. Der Bruchteil der Elektronenenergie  $E$ , der in Form von  $\gamma$ -Quanten beim Bremsprozeß emittiert wird, läßt sich darstellen als [5]

$$E_\gamma \approx \frac{ZE}{1000}$$

$Z$  = Ordnungszahl des bremsenden Kerns

Der Bremsstrahlungseffekt tritt jedoch merklich erst bei Elektronenenergien über 10 MeV auf. Andererseits sind  $\beta$ -aktive Nuklide mit Elektronenenergien über 10 MeV sehr selten, so daß Bremsstrahlung als  $\gamma$ -Quelle im Reaktor von untergeordneter Bedeutung ist.

### 2.1.7 Zusammenfassung

Den Hauptbeitrag der  $\gamma$ -Quellen in Reaktoren liefern die prompten Spalt- $\gamma$ 's, die kurzlebigen Spaltprodukte und die Einfang- $\gamma$ 's im Brennstoff sowie die  $\gamma$ 's aus der inelastischen Neutronenstreuung. Entsprechend den vorhergehenden Ausführungen läßt sich das gesamte Reaktor-Spektrum in zwei Komponenten zerlegen, was für die später zu diskutierenden Messungen von Bedeutung ist:

1. Ein Anteil ist proportional zum momentanen Neutronenfluß und damit zur Reaktorleistung und ändert sich prompt mit derselben.
2. Die zweite Komponente ist unabhängig von der jeweiligen Reaktorleistung (wohl aber von der Vorgeschichte des Reaktorbetriebes). Sie setzt sich zusammen aus den  $\gamma$ -Spektren der Spalt- und Aktivierungsprodukte.

Alle erwähnten Quellen, außer der Bremsstrahlung, liefern im Prinzip  $\gamma$ -Quanten diskreter Energien. Das prompte Spalt-Spektrum ist wegen der Vielzahl der Übergänge als quasi-kontinuierlich anzusehen. Wegen der Vielzahl und Mannigfaltigkeit der übrigen Quellen ist auch für das gesamte Spektrum eine kontinuierliche Form zu erwarten.

### 2.2 Wechselwirkungs- und Transportprozesse

Das im Reaktor sich aufbauende tatsächliche Strahlungsfeld ist mit dem ursprünglich vorhandenen Quell-Spektrum nicht identisch, da die  $\gamma$ -Strahlen im Reaktor denselben Wechselwirkungs- und Transportprozessen unterliegen, die allgemein für den Durchtritt von  $\gamma$ -Strahlung durch Materie typisch sind. Dies sind Photoeffekt, Comptoneffekt und Paarbildung.

Während Photoeffekt und Paarbildung als Absorptionsprozesse angesehen werden können (bei dem letztgenannten Prozeß entstehen allerdings wiederum zwei  $\gamma$ -Quanten von je 0.511 MeV), handelt es sich beim Comptoneffekt (elastischer Stoß eines  $\gamma$ -Quants mit einem relativ schwach gebundenen, d.h. "quasi-

freien" Elektron) um einen Streuprozess. (Im Zusammenhang mit der Wirkungsweise des Spektrometers wird auf den Comptoneffekt später noch etwas genauer eingegangen.)

Für die Schwächung (Absorption + Streuung) eines schmalen, parallelen, monoenergetischen Strahlenbündels der Intensität  $I$  in Abhängigkeit von der Dicke  $x$  der durchsetzten Materie gilt das exponentielle Schwächungsgesetz

$$I = I_0 \cdot e^{-\mu_t x}$$

wobei sich der totale Schwächungskoeffizient  $\mu_t$  additiv aus den einzelnen Schwächungskoeffizienten zusammensetzt:

$$\mu_t = \mu_{\text{Ph}} + \mu_{\text{C}} + \mu_{\text{Paar}}$$

$\mu_{\text{Ph}}$  = Photoeffekt

$\mu_{\text{C}}$  = Comptoneffekt

$\mu_{\text{Paar}}$  = Paarbildung

Die verschiedenen Prozesse treten in Konkurrenz zueinander auf. Für die Absorptionskoeffizienten  $\mu_i$  (und die dazu proportionalen Wirkungsquerschnitte  $\sigma_i$ ) ergeben sich im wesentlichen folgende Abhängigkeiten von der  $\gamma$ -Energie  $E_\gamma$  einerseits und den Kernladungszahlen  $Z$  der durchsetzten Materie andererseits [7]:

1.  $\mu_{\text{Ph}} \sim Z^5 \cdot E_\gamma^{-3.5}$

2.  $\mu_{\text{Paar}} \sim Z^2 \cdot (E_\gamma - 1.02 \text{ MeV})$

Dies gilt für den häufigsten Fall, nämlich daß die Paarbildung in Kernnähe erfolgt und die  $\gamma$ -Energie nur wenig über der Schwellenenergie von 1.02 MeV liegt. Für höhere Energien ist

$$\mu_{\text{Paar}} \sim Z^2 \cdot \ln E_\gamma$$

$$3. \mu_c \sim Z/E_\gamma \cdot \left[ \ln\left(\frac{2E_\gamma}{m_0c^2}\right) + 0.5 \right], \quad E_\gamma > 1 \text{ MeV}$$

Für ein typisches Reaktorstrukturmaterial, nämlich Eisen ( $Z=26$ ), zeigt Abb.7 den Verlauf von  $\sigma_{ph}$ ,  $\sigma_c$ ,  $\sigma_{paar}$  sowie von  $\sigma_t$  [8].

Das  $\gamma$ -Feld kann im Prinzip mit den in der Reaktorphysik üblichen Transport-Codes berechnet werden, wenn die Quellen und die Wechselwirkungsquerschnitte bekannt sind. Für den Fall eines unendlich ausgedehnten, homogenen Mediums und konstanter, stationärer Quelldichte, was näherungsweise für das Zentrum eines Reaktors zutrifft, gilt

$$Q_i + \sum_{j>i} \sum_s \cdot \phi_j = \sum_{a_i} \cdot \phi_i + \sum_{s_i} \cdot \phi_i \quad (6)$$

Quellen Einstreuung      Absorption      Ausstreuung

wobei

$i$	Energiegruppenindex
$Q_i$	Quelldichte
$\phi_i$	$\gamma$ -Fluß
$\sum_{j>i} \sum_s$	Streumatrix, Streuung von $j$ nach $i$
$\sum_{a_i}$	Absorptionsquerschnitt
$\sum_{s_i}$	Streuquerschnitt

### 3. Meßmethode

Ein  $\gamma$ -Spektrometer für die Messung von  $\gamma$ -Spektren in Reaktoren muß im wesentlichen drei Bedingungen erfüllen:

1. Kleine Abmessungen
2. Geringe Empfindlichkeit gegenüber Neutronen
3. Einfache Antwort-Funktionen

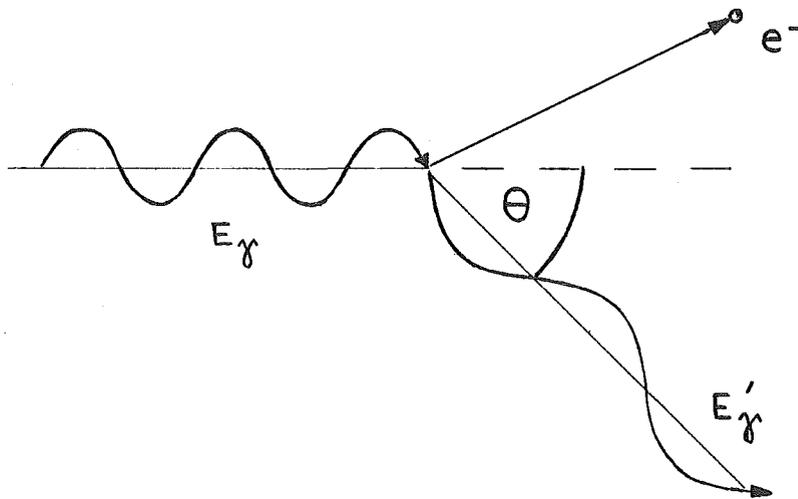
Unter Antwort-Funktionen versteht man die durch monoenergetische  $\gamma$ 's hervorgerufenen Impulshöhenverteilungen. Von den in Frage kommenden Spektrometern, NaJ(Tl)-Szintillatoren und Ge(Li)- bzw. Si(Li)-Halbleiterdetektoren eignen sich Si(Li)-Detektoren am besten. NaJ(Tl)-Szintillatoren haben, da sie ja zusätzlich einen Elektronenvervielfacher benötigen, zu große Abmessungen. Ge(Li)-Detektoren müssen mit flüssiger Luft gekühlt werden, was die Verwendung in Reaktoren praktisch ausschließt. Bei NaJ(Tl)- wie auch bei Ge(Li)-Detektoren spielt sowohl der Compton- als auch der Photoeffekt als Nachweisreaktion eine Rolle, was zu komplizierten Antwort-Funktionen führt, wodurch die Berechnung des  $\gamma$ -Spektrums aus der gemessenen Impulshöhenverteilung sehr erschwert wird.

Dagegen haben Si(Li)-Detektoren genügend kleine Abmessungen, können bei Raumtemperatur betrieben werden und haben relativ einfache Antwort-Funktionen, da  $\gamma$ 's praktisch ausschließlich über den Comptoneffekt nachgewiesen werden.

#### 3.1 Meßprinzip

##### 3.1.1 Der Comptoneffekt

Der Comptoneffekt beschreibt den Stoß eines  $\gamma$ -Quants mit einem freien (oder einem gegenüber der Energie des stoßenden  $\gamma$ -Quants  $E_\gamma$  nur schwach gebundenen, d.h. "quasifreien") Elektron.



Durch Anwendung des Energie- und Impuls-Erhaltungssatzes erhält man die Energie  $E'_\gamma$  des  $\gamma$ -Quants nach dem Stoß in Abhängigkeit vom Streuwinkel  $\theta$ :

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0 c^2} \cdot (1 - \cos \theta)} \quad (7)$$

$m_0 c^2$  = Ruhenergie des Elektrons

Für die Energie des Elektrons  $E_e$  nach dem Stoß folgt demnach:

$$E_e = E_\gamma - E'_\gamma \quad (8)$$

$E_\gamma$  wird minimal für Rückwärtsstreuung des Quants, d.h. für  $\theta=180^\circ$  oder  $\cos \theta = -1$ :

$$E'_{\gamma \min} = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{2 E_\gamma}{m_0 c^2}} \quad (9)$$

Entsprechend erhält das gestoßene Elektron einen maximalen Energieübertrag:

$$E_{e_{\max}} = E_{\gamma} - E'_{\gamma_{\min}} = \frac{E_{\gamma}}{1 + \frac{m_0 c^2}{2E_{\gamma}}} \equiv E_C \quad (10)$$

Die relativistische, quantenmechanische Behandlung des Compton-Effekts führt zu folgender Formel [9] für den winkelintegrierten Stoßquerschnitt eines freien Elektrons:

$$e\sigma_C = 2\pi r_0^2 \left[ \frac{1+\epsilon}{\epsilon^2} \left( \frac{2+2\epsilon}{1+2\epsilon} - \frac{\log(1+2\epsilon)}{\epsilon} \right) + \frac{\log(1+2\epsilon)}{2\epsilon} - \frac{1+3\epsilon}{(1+2\epsilon)^2} \right] \left[ \frac{\text{cm}^2}{\text{Elektron}} \right]$$

(Klein-Nishina-Formel) (11)

$$r_0 = \frac{e^2}{m_0 c^2} = 2.818 \cdot 10^{-13} \text{ cm, klassischer Elektronenradius}$$

$$\epsilon = \frac{E_{\gamma}}{m_0 c^2}$$

Der differentielle Wirkungsquerschnitt  $\frac{d_e \sigma}{dE_{\gamma}}$  beschreibt die Energieverteilung der gestreuten Quanten und damit gemäß (8) auch die Energieverteilung der Comptonelektronen.

Nach [9] ist

$$\frac{d_e \sigma}{dE_e}(E_e) = \frac{\pi r_0^2}{\epsilon^2 m_0 c^2} \left\{ 2 + \left( \frac{E_e}{E_{\gamma} - E_e} \right)^2 \left[ \frac{1}{\epsilon^2} + \frac{E_{\gamma} - E_e}{E_{\gamma}} - \frac{2}{\epsilon} \frac{(E_{\gamma} - E_e)}{E_e} \right] \right\} \quad (12)$$

In Abb.8 sind für einige  $\gamma$ -Energien die nach (12) berechneten Compton-Rückstoß-Elektronen-Spektren dargestellt. Auffallend ist der steile Anstieg zu einem ausgeprägten Peak im Bereich unterhalb der Comptonkante  $E_C$ .

Die durch den differentiellen Streuquerschnitt  $\frac{d_e \sigma}{dE_e}(E_e)$  beschriebenen Verteilungen sind, wenn man von sekundären Effekten absieht, mit den oben definierten Antwort-Funktionen

identisch. Darauf wird in 3.3 näher eingegangen.

### 3.1.2 Verknüpfung des Compton-Rückstoß-Spektrums mit dem gesuchten $\gamma$ -Spektrum

Im folgenden ist vorausgesetzt, daß  $\gamma$ -Strahlen im Detektormaterial ausschließlich über den Comptoneffekt wechselwirken.

Es sei

$\phi(E_\gamma)$	der skalare $\gamma$ -Fluß,
$\frac{d\sigma_c}{dE}(E, E_\gamma)$	der differentielle Wirkungsquerschnitt dafür, daß ein $\gamma$ -Quant der Energie $E_\gamma$ ein Compton-Rückstoß-Elektron mit einer Energie zwischen $E$ und $E+dE$ erzeugt,
$N_e$	die Gesamtzahl der Elektronen im Detektor.

Dann ist die Verteilung der Compton-Rückstoß-Elektronen gegeben durch

$$W_c(E) = N_e \int \frac{d\sigma_c}{dE}(E, E_\gamma) \phi(E_\gamma) dE_\gamma \quad (13)$$

Für numerische Auswertungen ist es zweckmäßig, die kontinuierliche Darstellungsweise durch Mittelwerte über Energie-Intervalle zu ersetzen. Führt man außerdem noch der Übersichtlichkeit halber die Matrix-Schreibweise ein, so wird aus (13):

$$W_i = \sum_j c_{ij} \phi_j \quad (14)$$

Mittels (14) läßt sich jeder Elektronenrückstoßenergie (Index  $i$ ) eine  $\gamma$ -Energie ( $j$ ) zuordnen, derart, daß nur  $\gamma$ 's mit höherer Energie Rückstoßelektronen im Energieintervall  $i$  erzeugen können. (Für eine bestimmte Elektronenrückstoßenergie  $E_e$  ist der zugehörige  $\gamma$ -Energiebereich durch



### 3.2 Das Si(Li)-Halbleiter-Spektrometer

Vereinigt man einen p-dotierten und einen n-dotierten Halbleiter-Kristall zu einem sogenannten p-n-Übergang, so entsteht um die Grenzschicht infolge Diffusion freier Ladungsträger (Elektronen vom n-dotierten Teil in den p-dotierten, Löcher vom p-dotierten in den n-dotierten) eine an Ladungsträgern verarmte Zone, die zunächst dadurch begrenzt wird, daß das sich aufbauende Feld (Diffusionsspannung) die Elektronen und Löcher wieder in die Ausgangsmaterialien zurückzieht. Die Verarmungszone (Raumladungszone) ist das empfindliche Volumen des Halbleiter-Detektors. Sie kann durch Anlegen einer äußeren Spannung in Sperr-Richtung vergrößert werden.

Bei dem vorliegenden HL-Detektor handelt es sich um eine p-i-n-Struktur, die sich durch eine besonders große Dicke der empfindlichen Schicht auszeichnet. Dies wird durch eine besondere Herstellungswiese erreicht. In p-leitendes Silizium läßt man Lithium (dreiwertig, Donator) zunächst hineindiffundieren und anschließend unter Einwirkung eines äußeren elektrischen Feldes noch tiefer in den Kristall driften. Das Konzentrationsprofil der Donatoren und Akzeptoren zeigt schematisch die Abb.9 [10]. In der Schichtdicke  $d$  ist die Donator- gleich der Akzeptorkonzentration. In dieser kompensierten Zone ist nur Eigenleitung des Ausgangsmaterials vorhanden ("i" für intrinsic). Im verwendeten Detektor ist die empfindliche Zone etwa 5 mm stark. Der Detektor-Durchmesser beträgt 12 mm. Die prinzipielle Wirkungsweise des Detektors ist die einer festen Ionisationskammer. Die beim Durchtritt von  $\gamma$ -Strahlen in der kompensierten Schicht gebildeten Compton-Elektronen erzeugen Elektron-Loch-Paare, die durch das in Sperr-Richtung angelegte elektrische Feld getrennt werden. Der auftretende Stromstoß liefert einen Ladungsimpuls, der dem Energieverlust des Compton-Elektrons in der empfindlichen Detektorschicht proportional ist. Der Ladungsimpuls wird über einen ladungsempfindlichen Vorverstärker in einen Spannungsimpuls umgeformt, der wiederum über einen linearen Hauptverstärker in einen Vielkanal-Analysator (512 Kanäle) entsprechend

seiner Amplitude einsortiert wird. Das resultierende Impulshöhenspektrum entspricht näherungsweise der Comptonverteilung. Gewisse Abweichungen treten auf wegen der endlichen Energieauflösung des Detektors und weil insbesondere bei hochenergetischen Compton-Elektronen die Möglichkeit besteht, daß sie nicht ihre gesamte Energie im empfindlichen Bereich des Detektors abgeben. Abb.10 zeigt den prinzipiellen Aufbau der Meßanordnung.

### 3.3 Berechnung des $\gamma$ -Spektrums aus der gemessenen Impulshöhenverteilung mittels des Programms SPEC 4

Zwischen der gemessenen Impulshöhenverteilung  $P(E)$  und dem  $\gamma$ -Spektrum  $\Phi(E_\gamma)$  besteht ein analoger Zusammenhang wie (13). Ist die Impulshöhenachse bereits in Elektronenenergien geeicht, dann gilt

$$P(E) = N_e \int_{E'_\gamma(E)}^{\infty} w(E, E_\gamma) \Phi(E_\gamma) dE_\gamma \quad (18)$$

Die Antwort-Funktion  $w(E, E_\gamma)$  entspricht näherungsweise dem differentiellen Comptonquerschnitt  $\frac{d\sigma}{dE}$ .

Die untere Integrationsgrenze ist dabei durch (15) definiert:

$$E'_\gamma(E) = \frac{E}{2} \left( 1 + \sqrt{1 + \frac{2m_0 c^2}{E}} \right) \quad (19)$$

Die Antwort-Funktion  $w(E, E_\gamma)$  ist annähernd kastenförmig. Bei dieser Form ist es für die weitere Auswertung zweckmäßig, (18) nach  $E$  zu differenzieren. Das liefert:

$$\frac{dP(E)}{dE} = N_e \left[ \int_{E'_\gamma}^{\infty} \Phi(E_\gamma) \frac{d}{dE} (w(E, E_\gamma)) dE_\gamma - w(E, E'_\gamma) \Phi(E'_\gamma) \frac{dE'_\gamma}{dE} \right] \quad (20)$$

Nach  $\Phi(E'_\gamma)$  aufgelöst erhält man:

$$\Phi(E'_\gamma) = - \frac{1}{w(E, E'_\gamma)} \cdot \frac{1}{dE'_\gamma/dE} \left[ \frac{1}{N_e} \cdot \frac{dP}{dE} - \int_{E'_\gamma}^{\infty} \Phi(E_\gamma) \frac{d}{dE} (w(E, E_\gamma)) \cdot dE_\gamma \right] \quad (21)$$

Das zweite Glied in der Klammer ist, wenn die Antwort-Funktion näherungsweise kastenförmig ist, ein Korrektur-Term. Der  $\gamma$ -Fluß  $\Phi(E'_\gamma)$  läßt sich daher in erster Näherung aus der Steigung  $dP/dE$  des Impulshöhenspektrums berechnen.  $E'_\gamma$  und  $dE'_\gamma/dE$  ist dabei über (19) durch  $E$  bestimmt.  $w(E, E'_\gamma)$  ist der Wert der Antwort-Funktion für  $\gamma$ 's der Energie  $E'_\gamma$  an der Comptonkante.

Die Berechnung des  $\gamma$ -Spektrums mittels (21) erfolgt mit dem Programm SPEC 4C, das auf einem für die Auswertung von Rückstoßprotonen-Spektren entwickelten Verfahren beruht [11]. Zunächst wird in vorgegebenen Energieintervallen die Steigung  $dP/dE$  bestimmt. Dann wird, beginnend mit der höchsten Energiegruppe, für die der Korrektur-Term Null ist,  $\Phi$  berechnet. Dabei ist vorausgesetzt, daß der  $\gamma$ -Fluß oberhalb der höchsten Energiegrenze genügend klein ist. Die Korrektur-Terme für die niedriger liegenden Gruppen werden aus den bereits bekannten Flußwerten der höheren Gruppen berechnet.

### 3.4 Untergrund-Reaktionen

#### 3.4.1 Photoeffekt und Paarbildung

Abb.11 [7] zeigt, daß in dem weiten Energiebereich zwischen wenigen 100 keV und einigen MeV der Wirkungsquerschnitt von  $\gamma$ -Strahlen in Silizium für den Comptoneffekt um Größenordnungen über dem für Photoeffekt und Paarbildung liegt. Wenn die anderen beiden Effekte ebenfalls merklich nachgewiesen würden, wäre die Form der Antwort-Funktionen wesentlich komplizierter, was die Auswertung der Impulshöhenspektren sehr erschweren würde.

### 3.4.2 Neutronen

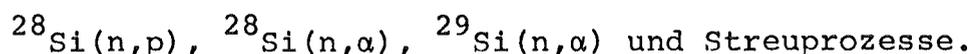
Der verwendete Detektor ist nicht vollkommen unempfindlich für Neutronen. Die folgenden Überlegungen zeigen jedoch, daß unter Bedingungen, wie sie für schnelle Reaktoren typisch sind, im Energiebereich oberhalb etwa 200 keV keine wesentlichen Störungen durch Neutronen zu erwarten sind.

#### a) Thermische Neutronen

In schnellen Reaktoren ist der thermische Fluß klein gegenüber dem schnellen Fluß. Da der Einfangquerschnitt in Silizium ebenfalls relativ klein ist (0.16 barn), spielen durch thermische Neutronen hervorgerufene Untergrund-Reaktionen keine merkliche Rolle. Das wird durch die Abschätzung in [2] bestätigt, die zeigt, daß der Neutronen-Einfang nur dann von Bedeutung wird, wenn der thermische Neutronenfluß wesentlich größer ist als der  $\gamma$ -Fluß.

#### b) Schnelle Neutronen

Mögliche Reaktionen schneller Neutronen im Detektor sind:



Die Q-Werte für die ersten beiden Reaktionen sind -3.85 MeV bzw. -2.65 MeV. Die Wirkungsquerschnitte sind mindestens um eine Größenordnung kleiner als die entsprechenden Comptonstreuquerschnitte. Für die letzte Reaktion liegt zwar der Q-Wert nur bei -0.035 MeV, jedoch ist der Wirkungsquerschnitt kleiner als für die  $^{28}\text{Si}(n,\alpha)$ -Reaktion, und außerdem ist die relative Isotopenhäufigkeit von  $^{29}\text{Si}$  kleiner als 5% [3].

Darüber hinaus ist noch die elastische Neutronen-Streuung in Betracht zu ziehen. Bei Streuung schneller Neutronen in Silizium beträgt der mittlere Energieverlust  $\sim 7\%$ . Demnach wird durch Streuung etwa eines 3 MeV-Neutrons im Detektor ein Rückstoßkern mit einer Energie von etwa 200 keV erzeugt. Diese Rückstoß-Impulse begrenzen den Meßbereich für das Compton-Rückstoß-Spektrometer nach unten. Da aber andererseits unterhalb 200 keV, wie Abb.11 zeigt, der Photoeffekt gegenüber dem

Comptoneffekt stärker ins Gewicht zu fallen beginnt, ist der Meßbereich ohnehin nach unten durch etwa diese Energie begrenzt.

Da in schnellen Reaktoren der Fluß oberhalb etwa 2 MeV sehr schnell abfällt, sind keine merklichen Neutronenuntergrundbeiträge im Energiebereich oberhalb etwa 200 keV zu erwarten.

#### 4. Experimentelle Bestimmung der Antwort-Funktionen

##### 4.1 Schwierigkeiten bei der Bestimmung der Antwort-Funktionen

Nach Gleichung (12) ist es prinzipiell möglich, die Elemente  $C_{ij}$  der Antwort-Matrix  $\underline{C}$  zu berechnen. Diese können jedoch nur dann für die Auswertung der Impulshöhenspektren benutzt werden, wenn die dadurch beschriebene theoretische Compton-Rückstoß-Elektronenverteilung für eine bestimmte Energie  $E_\gamma$  mit der gemessenen Impulshöhenverteilung genügend gut übereinstimmt.

Um festzustellen, inwieweit dies gewährleistet ist, wurden in Vorversuchen die Compton-Spektren mehrerer monoenergetischer  $\gamma$ -Quellen aufgenommen ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ). Dabei zeigte sich, daß ein beträchtlicher Unterschied zwischen der gemessenen Impulshöhenverteilung und der nach (12) berechneten Verteilung besteht. Die gemessenen Spektren steigen im niederenergetischen Teil steiler an und die Comptonkante ist weniger stark ausgeprägt im Vergleich zu den gerechneten Spektren. Dies hat im wesentlichen folgende Gründe: Infolge der endlichen Detektor-Größe entstehen Compton-Rückstoß-Elektronen, die ihre Energie nicht mehr ganz im empfindlichen Volumen des HL-Kristalls abgeben können und damit zu Impulsen führen, deren Signalhöhe nicht der Energie der Compton-Elektronen entspricht. Außerdem führen die in der Nähe der unempfindlichen Schicht erzeugten Elektronen zu Impulsen mit langsameren Anstiegszeiten und werden daher niedrigeren Energien zugeordnet (Wandeffekte). Dies erklärt sowohl den steilen Anstieg im unteren Teil des Compton-Spektrums als auch den weniger stark ausgeprägten Peak an der Comptonkante. Dieser Deformation des Spektrums durch Wandeffekte überlagert sich eine Verschmierung, die im wesentlichen durch das thermische Rauschen des Detektors bedingt ist und die sich insbesondere in der Nähe der Comptonkante bemerkbar macht. Die mit den genannten Quellen gemessenen Compton-Spektren zeigt Abb.12.

Die Deformationen der Comptonelektronen-Verteilung können, wie in [2] gezeigt wurde, erheblich reduziert werden. Mittels einer elektronischen Impulsformdiskrimination können diejenigen Impulse, deren Spuren nicht vollständig im empfindlichen Bereich des Detektors verlaufen, unterdrückt werden. Durch Kühlung kann das thermische Eigenrauschen des Detektors verringert werden. Die Pulsformdiskrimination ist sehr aufwendig und wurde daher nicht verwendet. Im Hinblick auf die SNEAK-Messungen kam als einzige Kühlmöglichkeit ein Peltier-Element in Frage. Die dazu durchgeführten Versuche ergaben unter günstigsten Laborbedingungen eine Temperaturabsenkung von  $15^{\circ}$  (gegenüber Raumtemperatur). Für die SNEAK-Messungen wäre eine Temperaturabsenkung von maximal  $10^{\circ}$  zu erwarten gewesen. Diese geringe Temperaturabsenkung hätte das thermische Rauschen nur unwesentlich verkleinert. Es wurde deshalb auch auf eine Kühlung des Detektors verzichtet.

Da die gemessenen Spektren doch erheblich von den theoretischen Compton-Verteilungen abweichen, mußten die Antwort-Funktionen experimentell bestimmt werden. Das geschah mit einer Reihe von  $\gamma$ -Quellen, die nur eine oder höchstens zwei  $\gamma$ -Linien emittieren, und deren relative Intensitäten mit einem geeichten Ge(Li)- $\gamma$ -Spektrometer bestimmt wurden.

#### 4.2 Eichung der $\gamma$ -Quellen mit einem Ge(Li)-Detektor und Bestimmung der Antwort-Funktionen

Wie frühere Messungen [2,3] zeigen, erstrecken sich  $\gamma$ -Spektren in Reaktoren bis etwa 3 MeV. Eine untere Grenze von etwa 300 keV ist durch die Spektrometereigenschaften (Rauschen) und durch die in 3.4 diskutierten Untergrund-Reaktionen gegeben. Zur experimentellen Bestimmung der Antwort-Funktionen braucht man einen Satz von möglichst monoenergetischen  $\gamma$ -Quellen, die diesen Energiebereich so vollständig überdecken, daß aus diesen Messungen die Antwort-Funktionen für eine beliebige Energie daraus durch Interpolation gewonnen werden können. Es wurden deshalb neben einigen üblichen Standardpräparaten auch einige

Radionuklide benutzt, die durch Neutronenbestrahlung im Reaktor erzeugt wurden. Tabelle 3 zeigt die verwendeten Nuklide, ihre  $\gamma$ -Energie(n), die zugehörige Energie der Comptonkante und die Halbwertszeit  $T_{1/2}$ .

Tabelle 3 Zur Bestimmung der Antwortfunktionen verwendete Nuklide

Nuklid	$E_{\gamma}$ [ $\bar{\text{MeV}}$ ]	$E_c$ [ $\bar{\text{MeV}}$ ]	$T_{1/2}$
$^{198}\text{Au}^x$	0.412	0.254	2.7 d
$^{22}\text{Na}$	0.511/1.275	0.341/1.062	2.6 a
$^{137}\text{Cs}$	0.662	0.477	30 a
$^{54}\text{Mn}$	0.835	0.640	303 d
$^{46}\text{Sc}^x$	0.889/1.12	0.691/0.912	84 d
$^{65}\text{Zn}$	1.115	0.907	245 d
$^{60}\text{Co}$	1.173/1.332	0.963/1.118	5.26 a
$^{28}\text{Al}^{xx}$	1.78	1.557	2.3 m
$^{24}\text{Na}^x$	1.369/2.754	1.153/2.52	15 h

x Im FR2 hergestellt

xx Durch Bestrahlung mit thermalisierten  $^{252}\text{Cf}$ -Neutronen hergestellt

Für die aufgeführten Quellen wurden mit dem Si(Li)-Spektrometer die Compton-Spektren aufgenommen. Die Geometrie, d.h. die Lage der Quellen relativ zum Detektor war stets dieselbe. Die relative Intensität der  $\gamma$ -Quellen wurde mit einem Ge(Li)-Spektrometer bestimmt, dessen Photopeak-Empfindlichkeit als Funktion der  $\gamma$ -Energie bekannt ist.

Es gilt

$$Q_{\text{rel}} = \frac{1}{\epsilon_p(E_\gamma)} \cdot Z_p$$

$Z_p$             Zählrate im Photopeak

$\epsilon_p(E_\gamma)$     Photopeak-Empfindlichkeit des Ge(Li)-Detektors

$Q_{\text{rel}}$         relative Quellstärke

$Z_p$  wurde durch Integration über den Photopeak des mit einem Impulshöhenanalysator gemessenen Spektrums ermittelt (Abb.13). Die Photopeak-Empfindlichkeit des Ge(Li)-Koaxial-Detektors ( $23 \text{ cm}^3$ ) wurde [12] entnommen.

Die normierten Compton-Verteilungen  $Z_{i\text{norm}}$  erhält man aus den ebenfalls mit einem Impulshöhenanalysator registrierten Spektren  $Z_i$  (Zählrate im Kanal i) des Si(Li)-Detektors durch Division durch die relativen Quellstärken, d.h.

$$Z_{i\text{norm}} = \frac{Z_i}{Q_{\text{rel}}}$$

Bei denjenigen Quellen, welche zwei  $\gamma$ -Linien emittieren ( $^{22}\text{Na}$ ,  $^{46}\text{Sc}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{24}\text{Na}$ ), und bei welchen sich entsprechend zwei Compton-Spektren überlagern, wurde der Beitrag einer Linie, für die es eine "in der Nachbarschaft liegende" monoenergetische Quelle gab, nach entsprechender Annormierung an die Form der bereits bestimmten (monoenergetischen) Comptonverteilung subtrahiert.

In Tabelle 4 ist dargestellt, welche  $\gamma$ -Linie jeweils subtrahiert wurde, und für welche  $\gamma$ -Energien schließlich normierte Compton-Verteilungen zur Verfügung standen.

Tabelle 4 Normierte Compton-Verteilungen

Nuklid	$E_{\gamma}$ (MeV)	Subtrahierte Linie $E_{\gamma}$ (MeV) (mittels Nuklid)	Normierte Compton- Verteilung $E_{\gamma}$ (MeV)
$^{198}\text{Au}$	0.412	-	0.412
$^{22}\text{Na}$	0.511/1.275	1.275 ( $^{60}\text{Co}$ )	0.511
$^{137}\text{Cs}$	0.662	-	0.662
$^{54}\text{Mn}$	0.835	-	0.835
$^{46}\text{Sc}$	0.889/1.120	1.115 ( $^{65}\text{Zn}$ )	0.889
$^{65}\text{Zn}$	1.115	-	1.115
$^{22}\text{Na}$	0.511/1.275	0.511 ( $^{22}\text{Na}$ )	1.275
$^{60}\text{Co}$	1.173/1.332	1.173 ( $^{65}\text{Zn}$ )	1.332
$^{28}\text{Al}$	1.780	-	1.78
$^{24}\text{Na}$	1.369/2.754	1.332 ( $^{60}\text{Co}$ )	2.754

Abb.14 zeigt die normierten Compton-Spektren. Daraus wurden die im Auswerte-Programm benutzten Antwort-Funktionen  $w(E, E_{\gamma})$  (18) dadurch gewonnen, daß die Spektren in 20 äquidistante Intervalle eingeteilt wurden und an den 21 Stützstellen zwischen  $E=0$  und  $E=E_c$  die entsprechenden Werte ermittelt wurden. Der theoretisch senkrechte Abfall an der Comptonkante (wie er vom Rechenprogramm verlangt wird) wurde dadurch realisiert, daß  $E_c$  in die Mitte des sich experimentell ergebenden Abfalls gelegt wurde und der Verlauf des Spektrums so bis  $E_c$  extrapoliert wurde, daß die Flächen  $F_1$  und  $F_2$  gleich waren. In Abb.15 ist dieses Verfahren am Beispiel von  $^{54}\text{Mn}$  dargestellt. Die Werte an den Stützstellen im Bereich unterhalb 300 keV sind ohne Bedeutung, da dieser Bereich nicht ausgewertet wird. Abb.16 und Tab.5 zeigen als Ergebnis die gesuchten Antwort-Funktionen. Für dazwischenliegende  $\gamma$ -Energien interpoliert das Auswerte-Programm diese Daten.

Tabelle 5 Gemessene Antwort-Funktionen  $w(E, E_\gamma)$

$\frac{E}{E_c}$	Nuklid $E_\gamma$ St.St.	$^{198}\text{Au}$	$^{22}\text{Na}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{54}\text{Mn}$	$^{46}\text{Sc}$	$^{65}\text{Zn}$	$^{22}\text{Na}$	$^{60}\text{Co}$	$^{28}\text{Al}$	$^{24}\text{Na}$
		0.412	0.511	0.662	0.835	0.889	1.115	1.275	1.332	1.780	2.754
0.0	1										
0.05	2										
0.1	3							0.575	0.520	0.353	0.160
0.15	4						0.640	0.487	0.452	0.297	0.135
0.2	5					0.730	0.525	0.420	0.395	0.253	0.115
0.25	6				0.715	0.620	0.445	0.365	0.347	0.220	0.100
0.3	7			0.800	0.632	0.540	0.386	0.325	0.305	0.199	0.090
0.35	8			0.726	0.566	0.482	0.340	0.291	0.269	0.181	0.082
0.4	9			0.657	0.507	0.432	0.305	0.261	0.241	0.163	0.074
0.45	10		0.815	0.607	0.460	0.393	0.280	0.238	0.218	0.149	0.068
0.5	11	1.096	0.733	0.570	0.420	0.361	0.260	0.218	0.201	0.137	0.062
0.55	12	0.992	0.673	0.538	0.390	0.338	0.244	0.202	0.186	0.126	0.057
0.6	13	0.956	0.638	0.512	0.367	0.324	0.230	0.191	0.176	0.116	0.053
0.65	14	0.945	0.620	0.496	0.353	0.315	0.225	0.185	0.170	0.108	0.049
0.7	15	0.953	0.615	0.487	0.346	0.315	0.222	0.180	0.165	0.102	0.046
0.75	16	0.985	0.625	0.492	0.346	0.320	0.219	0.178	0.163	0.097	0.044
0.8	17	1.037	0.647	0.508	0.358	0.333	0.220	0.180	0.166	0.094	0.043
0.85	18	1.070	0.667	0.533	0.387	0.356	0.229	0.186	0.172	0.095	0.043
0.9	19	1.093	0.683	0.550	0.411	0.379	0.243	0.199	0.183	0.101	0.046
0.95	20	1.108	0.696	0.558	0.423	0.393	0.264	0.210	0.195	0.108	0.049
1.0	21	1.118	0.700	0.560	0.425	0.400	0.275	0.212	0.200	0.110	0.050

Das Auswerte-Verfahren mit dem modifizierten Programm SPEC 4C wurde getestet, indem einige gemessene Compton-Verteilungen der Eichquellen mit den daraus ermittelten Antwort-Funktionen ausgewertet wurden. Abb.17 zeigt das Ergebnis. Die Auswertung liefert, wie zu erwarten, einen Peak bei der richtigen  $\gamma$ -Energie mit einer dem Spektrometer entsprechenden Energieauflösung.

## 5. Testmessungen mit einer Radium-Quelle

Die Meßmethode wurde durch Transmissions-Messungen mit einer Ra- $\gamma$ -Quelle überprüft.

Für ein paralleles Strahlenbündel gilt beim Durchtritt durch einen Absorber

$$\Phi(E_\gamma) = \Phi_0(E_\gamma) e^{-\mu(E_\gamma) \Delta x}$$

$\Phi_0$  ist das einfallende Spektrum der Ra-Quelle,  $\Phi$  das austretende Spektrum,  $\mu$  der Schwächungskoeffizient und  $\Delta x$  die Schichtdicke. Nach Umformung erhält man

$$\mu(E_\gamma) \cdot \Delta x = \ln \frac{\Phi_0}{\Phi}$$

und für kleine Schichtdicken gilt näherungsweise

$$\mu(E_\gamma) \cdot \Delta x = \frac{\Phi_0 - \Phi}{\Phi_0} \quad (22)$$

Die gemessenen Größen  $\Phi_0$  und  $\Phi$  können auf diese Weise mit dem bekannten Verlauf von  $\mu(E_\gamma)$  verglichen werden.

Die Versuchsanordnung zeigt schematisch Abb.18. Die Ra-Quelle ist zunächst in einem durchbohrten Bleiziegel, der als Kollimator dient, untergebracht. Zur Abschirmung wurde die Quelle samt Kollimator in den horizontalen Experimentierkanal eines großen Blei-Piles gelegt.

Als Absorber dienten Scheibchen aus den folgenden Materialien mit den angegebenen Dicken ( $\emptyset = 14$  mm):

Al, 8 mm

Fe, 2 mm

Pb, 1 mm

Die Dicken der einzelnen Scheibchen waren so gewählt, daß einerseits eine meßbare Fluß-Schwächung eintrat, andererseits die Näherung in Gleichung (22) noch erfüllt blieb. Die Ergebnisse zeigt Abb.19. Innerhalb des statistischen Fehlers stimmt die gemessene Größe  $\frac{\phi_0 - \phi}{\phi_0}$  mit  $\mu(E_\gamma)$  [4] gut überein.

Aufgrund der Ergebnisse dieser Testmessungen kann davon ausgegangen werden, daß die Antwort-Funktionen richtig bestimmt wurden und das Auswerte-Verfahren korrekt arbeitet.

## 6. Messungen in SNEAK

Die Schnelle Null-Energie-Anordnung Karlsruhe (SNEAK) stellt im Rahmen des Projekts "Schneller Brüter" die größte Experimentieranlage dar. Es können Leistungen bis zu mehreren hundert Watt gefahren werden. Die Anlage ist sehr flexibel ausgelegt. Es ist möglich, typische schnelle kritische Anordnungen verschiedener Größe, Form und Zusammensetzung aufzubauen. Die an der SNEAK gewonnenen Erkenntnisse dienen der Überprüfung und Untermauerung von Rechenmethoden und -ergebnissen für die Auslegung schneller Leistungsreaktoren. Das  $\gamma$ -Spektrum wurde in zwei typischen schnellen Anordnungen gemessen, und zwar in einem Uran- und in einem Plutonium-Core.

### 6.1 Die Anordnungen SNEAK 9C-1 und 9C-2

Bei der Anordnung SNEAK 9C-1 handelt es sich um ein Uran-Core. Die Brennelemente sind mit Uran-Plättchen verschiedener Anreicherungsstufen sowie Na-,  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ -,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ - und Stahl-Plättchen in der Sequenz gefüllt, wie sie Abb.20b zeigt. Abb.20a zeigt den Core- und Blanket-Aufbau. Die Anordnung SNEAK 9C-2 ist eine Plutonium-Natrium-Anordnung. Sie ging aus SNEAK 9C-1 durch sektorweise Substitution hervor. Abb.21a zeigt die Core-Konfiguration zum Zeitpunkt der Messung und Abb.21b die Core-Zusammensetzung. Die Sektorsubstitution war zu diesem Zeitpunkt zur Hälfte durchgeführt ( $180^\circ$ -Sektor).

### 6.2 Messungen und Ergebnisse

Aus Tab.6 geht hervor, an welchen Positionen im Reaktor bei welchen Leistungen gemessen wurde. Außerdem sind die entsprechenden Abbildungen aufgeführt, welche die jeweiligen Ergebnisse zeigen.

Tabelle 6 Meßpositionen im Reaktor, Reaktorleistung und zugehörige Abbildungen der gemessenen Spektren

Anordnung	Meßposition	Reaktorleistung	Spektrum
SNEAK 9C-1	Core-Zentrum 17/19 BE: 1-18/383	abgeschaltet	Abb.22
	"	50 mW	Abb.23b
	Blanket (axial) 17/19 BE: 1-19/383	abgeschaltet	Abb.24
	"	50 mW	Abb.25
SNEAK 9C-2	Core-Zentrum 17/23 BE: 2-5/061	abgeschaltet	Abb.26
	"	150 mW	Abb.27
	Blanket (axial) 17/23 BE: 2-6/061	abgeschaltet	Abb.28
	"	150 mW	Abb.29

Bei den im Core-Zentrum durchgeführten Messungen war das betreffende Brennelement soweit aufgefüllt, daß der Detektor etwa in der Coremittelebene saß. Oberhalb der Detektorkammer war das Brennelement mit durchbohrten Plättchen aufgefüllt. Bei den Messungen im axialen Blanket saß der Detektor etwa 5 cm innerhalb des Blanketbereiches. Ein größerer Abstand zur Core-Zone konnte wegen der Länge der Detektorkammer nicht erreicht werden.

Die Messungen für die Plutonium-Anordnung wurden durchgeführt, nachdem die Sektorsubstitution bis zur Hälfte (180°-Sektor) fortgeschritten war. Dabei war die Überlegung maßgebend, daß einerseits bei entsprechender Wahl der Meßposition in der Mitte der Plutonium-Zone ein für das gesamte Plutonium-Core typisches  $\gamma$ -Spektrum zu erwarten war (ohne Beeinflussung durch

die 9C-1-Zone), und andererseits das Core infolge  $\alpha$ -Zerfällen des Plutoniums noch nicht so heiß war wie bei voller Beladung mit Plutonium. Bei vollständig mit Plutonium beladenem Core wäre eine Temperatur von etwa 40 °C zu erwarten und eine einwandfreie Arbeitsweise des Detektors nicht mehr gewährleistet gewesen.

In beiden Anordnungen war bereits bei abgeschaltetem Reaktor, insbesondere im zentralen Bereich des Cores, ein erheblicher  $\gamma$ -Fluß vorhanden. Im Uran-Core ist der  $\gamma$ -Untergrund im wesentlichen auf die Aktivität der langlebigen Spaltprodukte zurückzuführen, während im Plutonium-Core neben den langlebigen Spaltprodukten auch die Spontanspaltungen sowie der  $\alpha$ -Zerfall des Plutoniums (und Folgezerfälle) zum  $\gamma$ -Untergrund beitragen. Es wurden daher zunächst in beiden Fällen die Untergrundspektren sowohl im Core als auch im Blanket bei abgeschaltetem Reaktor gemessen. Die Messungen bei kritischem Reaktor wurden bezüglich dieser Untergrundspektren korrigiert. Die Meßzeit pro Spektrum betrug jeweils 1000 sec. Bei abgeschaltetem Reaktor lag die Zählrate im Core bei etwa  $10^4$ /sec (Analysatorzeit  $\sim 20\%$ ), bei kritischem Reaktor betrug die Zählrate bis zu  $2 \cdot 10^4$ /sec (Totzeit bis zu 30%). Bei diesen hohen Zählraten ist eine gewisse Verfälschung des Spektrums durch "pile-up" und durch eine Verschiebung der Energieeichung nicht auszuschließen.

Die ausgewerteten Differenzspektren (Spektrum des kritischen Reaktors - Spektrum des abgeschalteten Reaktors) entsprechen näherungsweise dem "Gleichgewichtsspektrum" eines Leistungsreaktors. (Nur die sehr langlebigen Spaltprodukte sind nicht im Gleichgewicht.) Die gemessenen Spektren, welche die Abbildungen 22-29 zeigen, sind nicht absolut. Für die verschiedenen Positionen einer Anordnung geben sie jedoch den Intensitätsverlauf richtig wieder.

### 6.3 Diskussion der Meßergebnisse

#### Untergrund-Spektren:

Das in Abb.22 gezeigte Untergrund-Spektrum im 9C-1-Core weist zwei deutliche Peaks bei 0,7 MeV und 1,6 MeV auf. Diese sind im wesentlichen auf die Zerfälle der längerlebigen Spaltprodukte  $^{95}\text{Zr}$  (0,724, 0,757 MeV),  $^{95}\text{Nb}$  (0,766 MeV) und  $^{140}\text{La}$  (1,596, 0,816 MeV) zurückzuführen. Durch Ausmessen eines einzelnen Brennstoff-Plättchens mit einem Ge(Li)-Spektrometer konnten die betreffenden Linien einzeln aufgelöst und den angegebenen Nukliden zugeordnet werden [13].

Im Gegensatz zum 9C-1-Core zeigt das 9C-2-Untergrund-Spektrum im Core keine ausgeprägten Peaks. Die diskreten Linien der langlebigen Spaltprodukte werden offenbar durch die mehr oder weniger kontinuierlichen Verteilungen aus der Spontanspaltung und aus dem  $\alpha$ -Zerfall des Plutoniums überdeckt.

Im Blanket beider Anordnungen ist der Untergrund relativ klein. Er stammt im wesentlichen vom Durchgriff des Core- $\gamma$ -Untergrunds.

#### Gleichgewichts-Spektren

In den Tabellen 7 und 8 sind einige wichtige Daten zusammengefaßt, die zum Verständnis der gemessenen Spektren beitragen können. Tabelle 7 enthält die Atomzahlen pro Einheitszelle der wichtigsten Materialien in Core und Blanket. In Tabelle 8 sind die berechneten Werte von einigen zur  $\gamma$ -Produktion beitragenden Reaktionsraten für die jeweiligen Detektorposition aufgeführt [14].

Wie in Kapitel 2 beschrieben, entsteht im Core das  $\gamma$ -Spektrum vor allem durch Spalt- $\gamma$ 's, Einfang- $\gamma$ 's und durch inelastische Neutronenstreuung. Die Reaktionsraten in Tabelle 8 zeigen, daß sich in den einzelnen Core-Anordnungen die  $\gamma$ -Spektren näherungsweise wie folgt zusammensetzen:

Uran-Core: Spaltung U-235 + Einfang U-238, U-235 + Inelastische Streuung U-238

Plutonium-Core: Spaltung Pu-239 + Einfang U-238, Pu-239 + Inelastische Streuung U-238

Blanket: Einfang U-238 + Inelastische Streuung U-238 + Spaltung U-238 + Core-Durchgriff

Die Spektren der Spalt- $\gamma$ 's von  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  unterscheiden sich kaum (2.1.1). Sowohl das bei Einfang (Abb.30, [15]) als auch das bei inelastischer Streuung an  $^{238}\text{U}$  entstehende  $\gamma$ -Spektrum ist weicher als das der Spalt- $\gamma$ 's. Oberhalb etwa 1,5 MeV sind die  $\gamma$ -Absorptionsquerschnitte näherungsweise konstant, unterhalb steigen sie mit abnehmender Energie stark an. Im Blanket ist die Absorption wegen der etwa eineinhalb mal so großen Dichte wesentlich stärker als im Core-Bereich. Danach wäre qualitativ etwa folgendes zu erwarten:

1. Die Core-Spektren sollten etwas härter sein als die Spektren im Blanket.
2. Die Spektren im Uran- und Plutonium-Core sollten im wesentlichen gleich sein.
3. Die Spektren im Blanket sowohl des Uran- wie des Plutonium-Cores sollten im wesentlichen gleich sein.

Vergleicht man daraufhin die gemessenen Spektren, so stellt man fest:

1. Die Core-Spektren sind wie erwartet härter als die Blanket-Spektren.
2. Das Spektrum des Uran-Cores ist härter als das Spektrum des Plutonium-Cores. Das war aufgrund der vorhergehenden Überlegungen nicht zu erwarten. Folgende Gründe könnten dafür maßgeblich sein:
  - a) Die Reaktionsratenverhältnisse der beiden Cores sind etwas verschieden.
  - b) Bei der 9C-2-Messung saß der Detektor zwar in der Mitte der Plutonium-Zone, jedoch dezentral in der axialen Mittelebene des Cores. Die Reaktionsraten in Tab.8 gelten jedoch für das Corezentrum eines vollständig substituierten Plutonium-Cores.

Tabelle 7 Atomzahlen/Einheitszelle (Einheit  $10^{24}$ ) der wichtigsten Materialien für die untersuchten SNEAK-Anordnungen

9C-1			9C-2	
Material	Core	Blanket	Core	Blanket
U-235	0,341	0,018	Pu-239: 0,073	U-235: 0,006
U-238	0,789	4,59	0,22	1,53
Fe	1,235	0,438	0,379	0,146
Cr	0,298	0,123	0,107	0,041
Ni	0,238	0,087	0,062	0,029
Na	0,982		0,308	
Höhe der Einheitszelle: 3,75 cm			Höhe der Einheitszelle: 1,25 cm	
Dichten:	Core: $\sim 0,39 \cdot 10^{23}$ Atome/cm <sup>3</sup>		Blanket: $\sim 0,56 \cdot 10^{23}$ Atome/cm <sup>3</sup>	

Tabelle 8 Berechnete Reaktionsraten für die untersuchten SNEAK-Anordnungen [14]  
(Relativwerte)

Reaktion, Nuklid	9C-1		9C-2	
	Core	Blanket	Core	Blanket
Einfangrate total	$0,181 \cdot 10^{-5}$	$0,280 \cdot 10^{-3}$	$0,465 \cdot 10^{-4}$	$0,310 \cdot 10^{-3}$
Spaltrate total	$0,364 \cdot 10^{-5}$	$0,473 \cdot 10^{-4}$	$0,861 \cdot 10^{-4}$	$0,510 \cdot 10^{-4}$
Einfangrate Pu-239	-	-	$0,124 \cdot 10^{-4}$	-
" Pu-240	-	-	$0,104 \cdot 10^{-5}$	-
" U-235	$0,710 \cdot 10^{-6}$	$0,203 \cdot 10^{-5}$	$0,367 \cdot 10^{-6}$	$0,231 \cdot 10^{-5}$
" U-238	$0,961 \cdot 10^{-6}$	$0,275 \cdot 10^{-3}$	$0,279 \cdot 10^{-4}$	$0,305 \cdot 10^{-5}$
Spaltrate Pu-239	-	-	$0,732 \cdot 10^{-4}$	-
" Pu-240	-	-	$0,188 \cdot 10^{-5}$	-
" U-235	$0,329 \cdot 10^{-5}$	$0,881 \cdot 10^{-5}$	$0,157 \cdot 10^{-5}$	$0,970 \cdot 10^{-5}$
" U-238	$0,345 \cdot 10^{-6}$	$0,385 \cdot 10^{-4}$	$0,880 \cdot 10^{-5}$	$0,413 \cdot 10^{-4}$

c) Pile-up-Effekte oder eine Verschiebung der Energieeichung aufgrund der sehr hohen Zählraten könnten zu einem systematischen Fehler geführt haben. Die beiden Peaks im Uran-Spektrum Abb.23b bei 0,7 und 1,5 MeV sind darauf zurückzuführen, daß die Untergrundsubtraktion mit einer Totzeitkorrektur einhergehen mußte, die nicht ganz zufriedenstellend gelang.

3. Das Spektrum im Blanket der Uran-Anordnung ist härter als das der Plutonium-Anordnung. Dies ist wohl im wesentlichen auf den Durchgriff des härteren Uran-Core-Spektrums zurückzuführen.

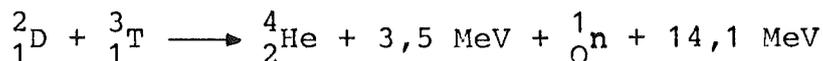
Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die gemessenen Spektren in etwa die Form besitzen, die aufgrund der qualitativen Überlegungen zu erwarten war.

Der relativ große Unterschied in den Spektren der Uran- und der Plutonium-Anordnung läßt sich wahrscheinlich nicht vollständig durch die verschiedenen Reaktionsratenverhältnisse erklären. Es kann nicht ausgeschlossen werden, daß die hohen Zählraten zu einer gewissen Deformation der gemessenen Spektren führte.

## 7. Messungen in einer Lithium-Kugel

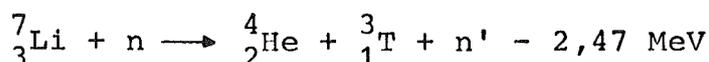
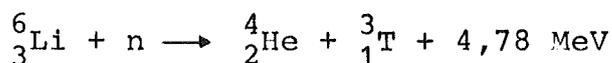
In zukünftigen Fusions-Reaktoren hofft man, aus der Verschmelzung von Wasserstoff-Kernen Energie zu gewinnen. Für den Fusions-Prozeß kommen die Wasserstoff-Isotope Deuterium und Tritium in Frage. Gegenüber der Verschmelzung von Deuterium-Kernen allein ist die Fusion von Deuterium und Tritium besonders interessant, weil bei den notwendigen Plasmatemperaturen zwischen 10 und 100 keV der Wirkungsquerschnitt für die D-T-Reaktion etwa 100mal größer ist als für die D-D-Reaktion. Daher ist für eine erste Fusions-Reaktorgeneration ein D-T-Gemisch als Brennstoff vorgesehen. Während jedoch die natürlichen Vorräte an Deuterium im Wasser der Weltmeere als praktisch unerschöpflich angesehen werden können, ist Tritium als relativ kurzlebiges ( $T_{1/2} = 12.3a$ ) radioaktives Element in der Natur nicht verfügbar und muß daher künstlich hergestellt werden.

Die Reaktionsgleichung der D-T-Verschmelzung lautet:



Die dabei entstehenden Neutronen entweichen aus dem Plasma und können ihre kinetische Energie an einem Moderator als nutzbare Wärme abgeben. Ein Mantel aus Lithium, der das Plasma umgibt, kann auf diese Weise zwei Funktionen gleichzeitig erfüllen. Lithium soll

1. als Kühlmittel dienen und die im Mantel deponierte Wärmeenergie abführen und
2. als Brutmaterial für die Nachlieferung von Tritium sorgen. Die Reaktionsgleichung für den Tritium-Brut-Prozeß lautet:



(Natürliche Zusammensetzung des Lithium: 7,42%  ${}^6\text{Li}$ , 92,58%  ${}^7\text{Li}$ )

Im Hinblick auf die vorgesehene Verwendung von Lithium in Fusionsreaktoren wurden in SUAK (Schnelle Unterkritische Anordnung Karlsruhe) an einer Li-Kugel ( $\varnothing = 1$  m) verschiedene neutronen-physikalische Experimente vorgenommen. Im Zentrum der Kugel wurden über die D-T-Reaktion 14 MeV-Neutronen erzeugt und deren Verhalten in der Li-Kugel untersucht. Hauptziel der Untersuchungen war die Tritiumbildung (Brutrate) und Neutronenspektrumsmessungen. Daneben wurde auch das  $\gamma$ -Spektrum bestimmt, weil die  $\gamma$ -Strahlung einen nicht unerheblichen Anteil der gesamten, im Li-Brutmantel erzeugten Leistung darstellt.

Die Li-Kugel besitzt einen zum Zentrum führenden Kanal, durch den der Deuterium-Strahl auf das in der Kugelmitte befindliche Tritium-Target trifft, sowie einen dazu senkrechten zentralen Experimentierkanal. Ein zweiter Experimentierkanal ist etwas seitlich versetzt. In diesem wurde die  $\gamma$ -Messung vorgenommen. Den schematischen Aufbau der Versuchsanordnung zeigt Abb.31.

Da durch die 14 MeV-Neutronen mit einem merklichen Untergrund im Si(Li)-Detektor zu rechnen war, wurde am T-Target ohne Li-Umgebung zunächst das Neutronen-Untergrund-Spektrum gemessen. Dieser Untergrund-Beitrag wurde an das Spektrum der  $\gamma$ -Messung im Bereich oberhalb 2 MeV annormiert und davon subtrahiert. In diesem Bereich wird das Spektrum weitgehend durch Neutronenreaktionen im Silizium bestimmt.

Das ausgewertete  $\gamma$ -Spektrum zeigt Abb.32. Der ausgeprägte Peak entspricht der Anregung des 0,478 MeV-Niveaus von  ${}^7\text{Li}$ . Diese  $\gamma$ -Linie entsteht hauptsächlich durch inelastische Neutronenstreuung an  ${}^7\text{Li}$  und in geringem Maße auch durch n- $\gamma$ -Prozesse in  ${}^6\text{Li}$ . Den Verlauf des Wirkungsquerschnitts für die Produktion dieser  $\gamma$ -Linie über die inelastische Streuung an  ${}^7\text{Li}$  zeigt Abb.33 [16].

Aus der Abb.32 ist ersichtlich, daß das  $\gamma$ -Spektrum im Li-Blanket eines Fusionsreaktors weitgehend aus der 0,478 MeV-

Linie und der durch sie hervorgerufenen niederenergetischen Streustrahlung besteht. Höherenergetische  $\gamma$ -Linien treten nur mit geringer Intensität auf.

## 8. Zusammenfassung

Die in einem Kernreaktor entstehende  $\gamma$ -Strahlung ist von erheblichem Interesse bei Überlegungen, die im Zusammenhang mit Fragen der Abschirmung, der Strahlenbiologie und Strahlenchemie angestellt werden. Vor allem aber schenkt man im Zuge der Entwicklung schneller Reaktoren der sogenannten  $\gamma$ -Heizung zunehmende Beachtung, da die  $\gamma$ -Strahlung mit etwa 10% einen nicht geringen Teil zu der gesamten Reaktorleistung beiträgt. Durch integrale Meßmethoden (RPL-Gläser, TL-Detektoren) kann man die  $\gamma$ -Heizung bestimmen. Um die damit gewonnenen Erkenntnisse auf Strukturmaterialien und Einbauten von Reaktoren übertragen zu können, ist jedoch die Kenntnis des  $\gamma$ -Spektrums erforderlich.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit war es, die Energieverteilung der  $\gamma$ -Strahlung in einer typischen schnellen Anordnung zu bestimmen. Da eine Vielzahl von Einzelprozessen zur Produktion von  $\gamma$ -Strahlen führen kann, gestaltet sich die Berechnung des Spektrums äußerst schwierig. Die  $\gamma$ -Energieverteilung wurde deshalb experimentell bestimmt. Für die Messungen wurde ein Si(Li)-Halbleiter-Detektor benutzt und von der Methode der Compton-Rückstoß-Spektrometrie Gebrauch gemacht. Um bei der Auswertung der gemessenen Compton-Rückstoß-Spektren das (modifizierte) Rechenprogramm SPEC 4C anwenden zu können, wurden die Antwort-Funktionen des Si(Li)-Detektors für monoenergetische  $\gamma$ -Strahlen mit Hilfe mehrerer  $\gamma$ -Quellen verschiedener Energie bestimmt. Das Auswerteverfahren wurde getestet, indem mit Hilfe einer Radium-Quelle die  $\gamma$ -Schwächungskoeffizienten verschiedener Materialien experimentell bestimmt und mit den bekannten Literaturwerten verglichen wurden.

Die Messung des  $\gamma$ -Spektrums wurde an den Anordnungen SNEAK 9C-1 (Uran-Core) und SNEAK 9C-2 (Plutonium-Core) sowohl im Core als auch im Blanket durchgeführt.

Über die ursprüngliche Themenstellung der Arbeit hinaus wurde zusätzlich auch das  $\gamma$ -Spektrum gemessen, das in einer Lithium-Kugel durch 14 MeV-Neutronen hervorgerufen wird. In zukünftigen Fusionsreaktoren soll Lithium als Kühlmittel und Brutmaterial für die Nachlieferung von Tritium als Brennstoff eingesetzt werden. Im Hinblick darauf sind Kenntnisse des  $\gamma$ -Spektrums für die Abschätzung der Leistungsdichte von Nutzen.

Literatur

- [1] W. BÖHM, H. HARDER et al.:  
Reaktorphysik als etablierte Ingenieurwissenschaft und  
ihre Rolle im Reaktorbau  
atomwirtschaft 8,9 (1973) 421-426
- [2] R. GOLD:  
Compton Recoil Gamma-Ray Spectroscopy  
Nucl. Instr. Meth. 84 (1970) 173-194
- [3] M.G. SILK:  
The energy spectrum of the gamma radiation in the  
DAPHNE core  
Journal of Nucl. Energy 23 (1969) 308-313  
M.G. SILK, S.B. WRIGHT:  
The determination of the energy spectrum of gamma  
radiation near the core centre of GLEEP  
AERE-M 1981 (1967)
- [4] Reactor Handbook, Vol.IIIB  
Interscience Publishers New York, London (1962)
- [5] IAEA-Technical Reports Series No.127:  
Determination of Absorbed Dose in Reactors  
IAEA, Wien (1971)
- [6] R.G. JAEGER et al.:  
Engineering Compendium on Radiation Shielding,  
Vol. I Shielding Fundamentals and Methods  
Springer-Verlag Heidelberg, New York (1968)
- [7] H. BÜKER:  
Theorie und Praxis der Halbleiterdetektoren für  
Kernstrahlung  
Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York (1971)

- [8] G.W. GRODSTEIN:  
X-ray Attenuation Coefficients from 10 keV to 100 MeV  
NBS Circular 583 (1957)
- [9] R.D. EVANS:  
Compton Effect  
Handbuch der Physik, Bd. XXXIV Korpuskeln und Strahlung  
in Materie II  
Springer-Verlag Berlin, Göttingen, Heidelberg (1958)
- [10] O.C. ALLKOFER:  
Teilchendetektoren  
Verlag Karl Thiemig KG, München (1971)
- [11] P.W. BENJAMIN:  
The Analysis of Recoil Proton Spectra  
AWRE Report No. O-9/68 (1968)
- [12] B.P. SINGH, H.C. EVANS:  
Relative efficiency of Ge(Li)  $\gamma$ -ray detectors from  
0,5 to 12 MeV  
Nucl. Instr. Meth. 97 (1971) 475-482
- [13] W. SCHOLTYSSSEK:  
private Mitteilung
- [14] W. SCHOLTYSSSEK:  
private Mitteilung
- [15] E. TROUBETZKOY, H. GOLDSTEIN:  
A Compilation of Information on Gamma-Ray Spectra  
from Thermal-Neutron Capture  
ORNL-2904 (1961)
- [16] J.R. STEHN, M.D. GOLDBERG et al.:  
Neutron Cross Sections, Vol. I  
BNL 325, 2nd ed., Suppl. No. 2 (1964)

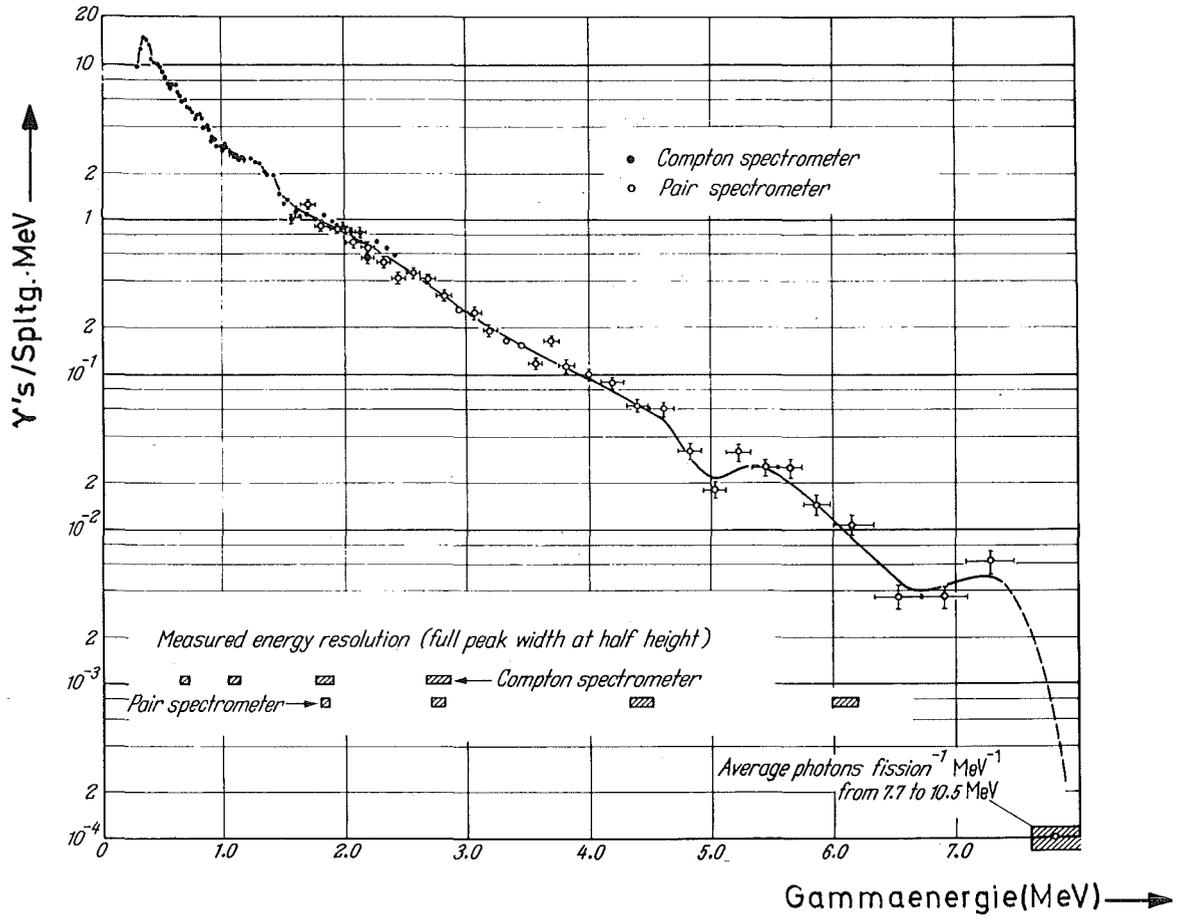


Abb.1 Promptes  $\gamma$ -Spektrum bei thermischer  $^{235}\text{U}$ -Spaltung [4]

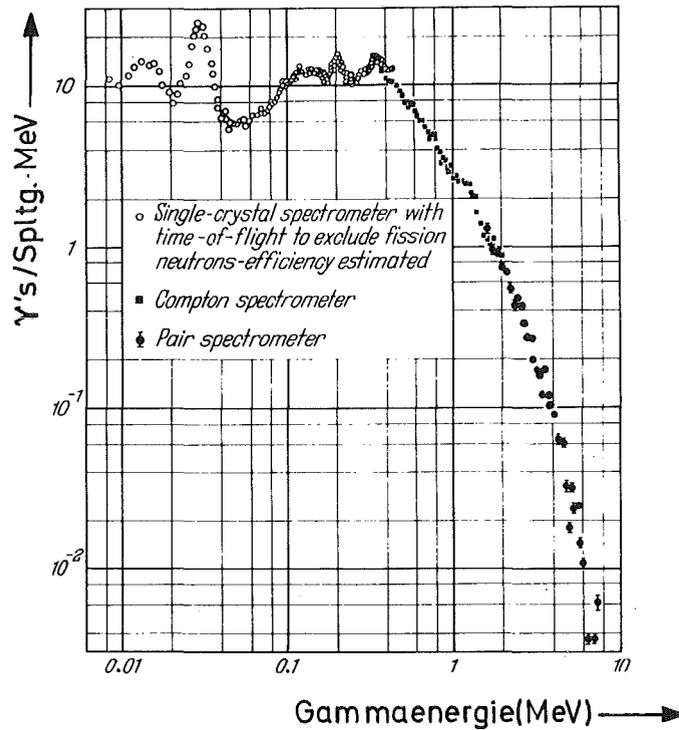


Abb.2 Promptes  $\gamma$ -Spektrum bei thermischer  $^{235}\text{U}$ -Spaltung - unterer Energiebereich [6]

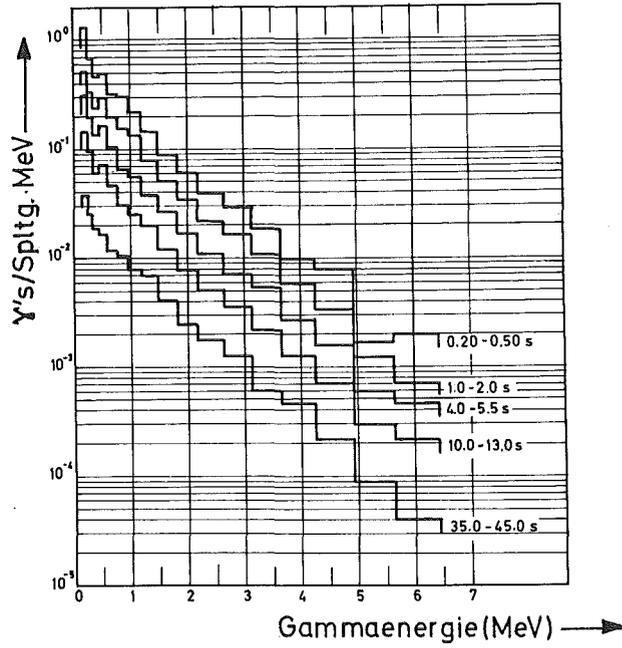


Abb.3 Energieverteilung der Spaltprodukt- $\gamma$ -Strahlung als Funktion der Zeit nach der Spaltung [5]

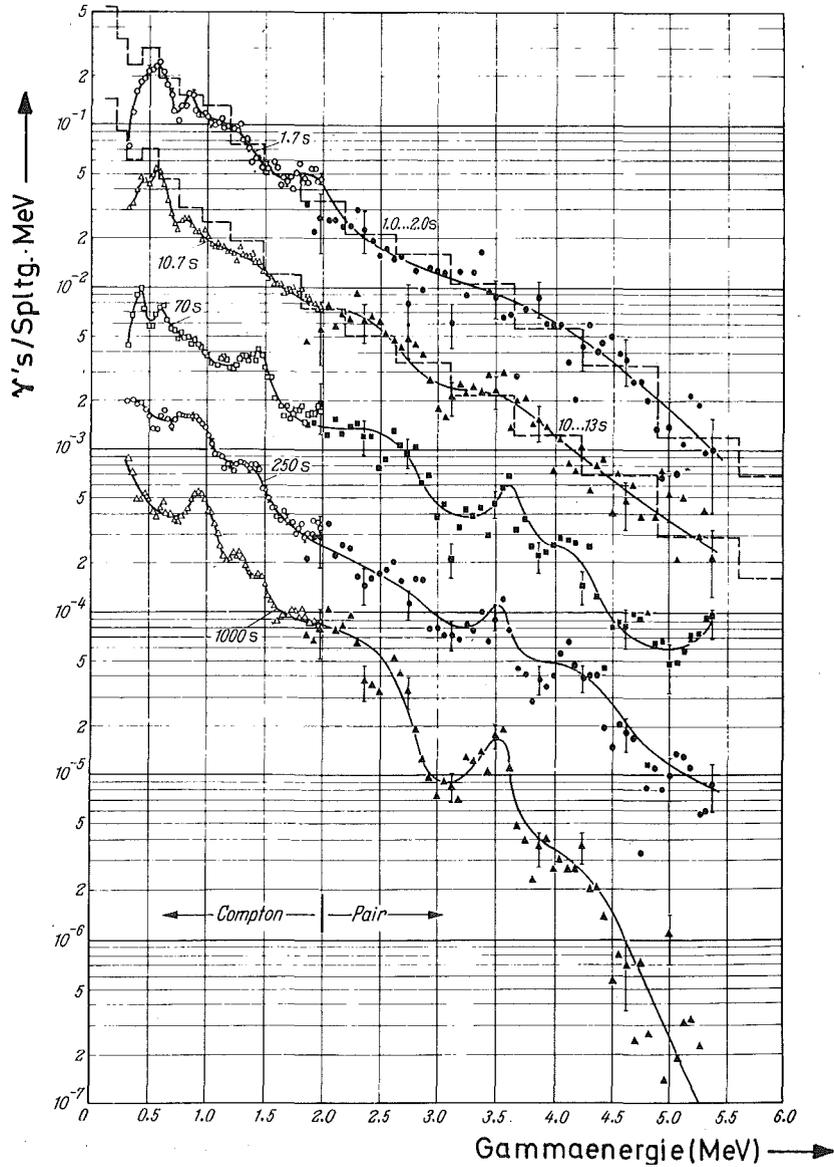
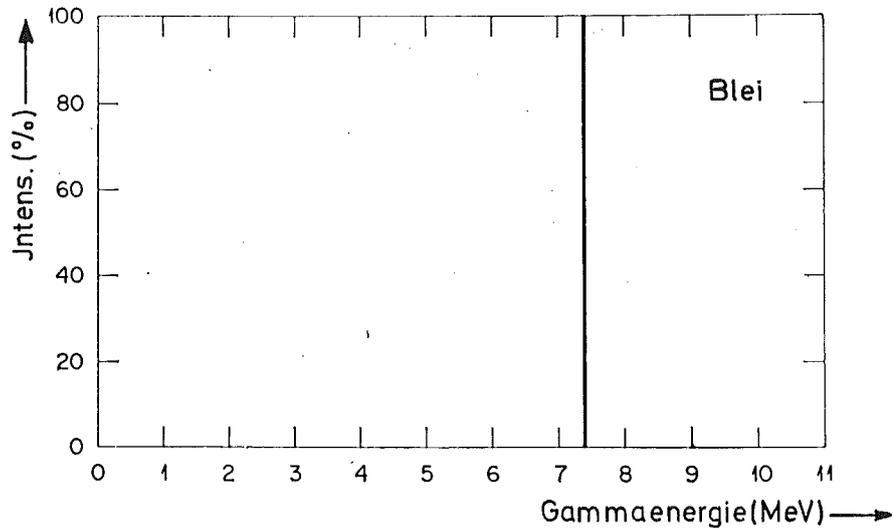
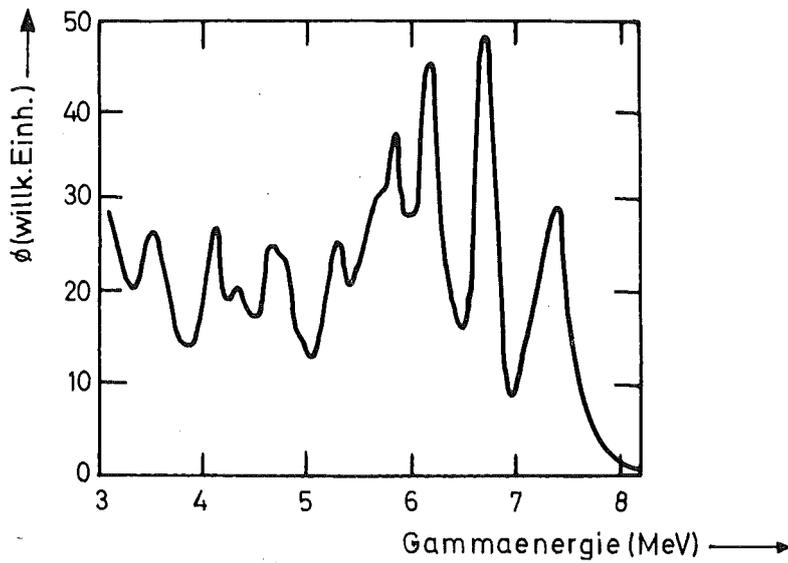


Abb.4 Energieverteilung der Spaltprodukt- $\gamma$ -Strahlung als Funktion der Zeit nach der Spaltung [6]



a)



b)

Abb.5 Einfang- $\gamma$ -Spektren von Blei: a) thermische [4], b) 30 keV-Neutronen [5]

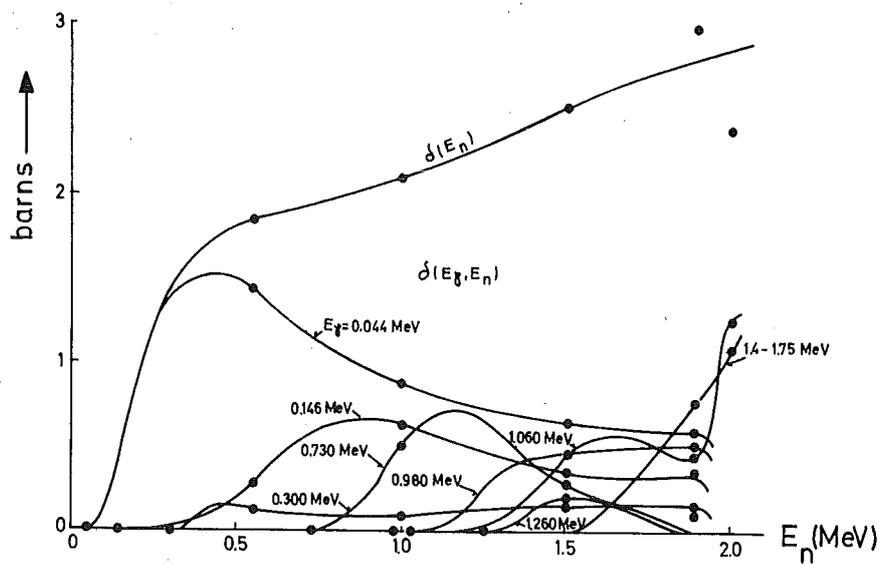


Abb.6 Inelastische Streuquerschnitte für  $^{238}\text{U}$  [5]  
 Totaler ( $\delta(E_n)$ ) und Partialquerschnitte ( $\delta(E_\gamma, E_n)$ )

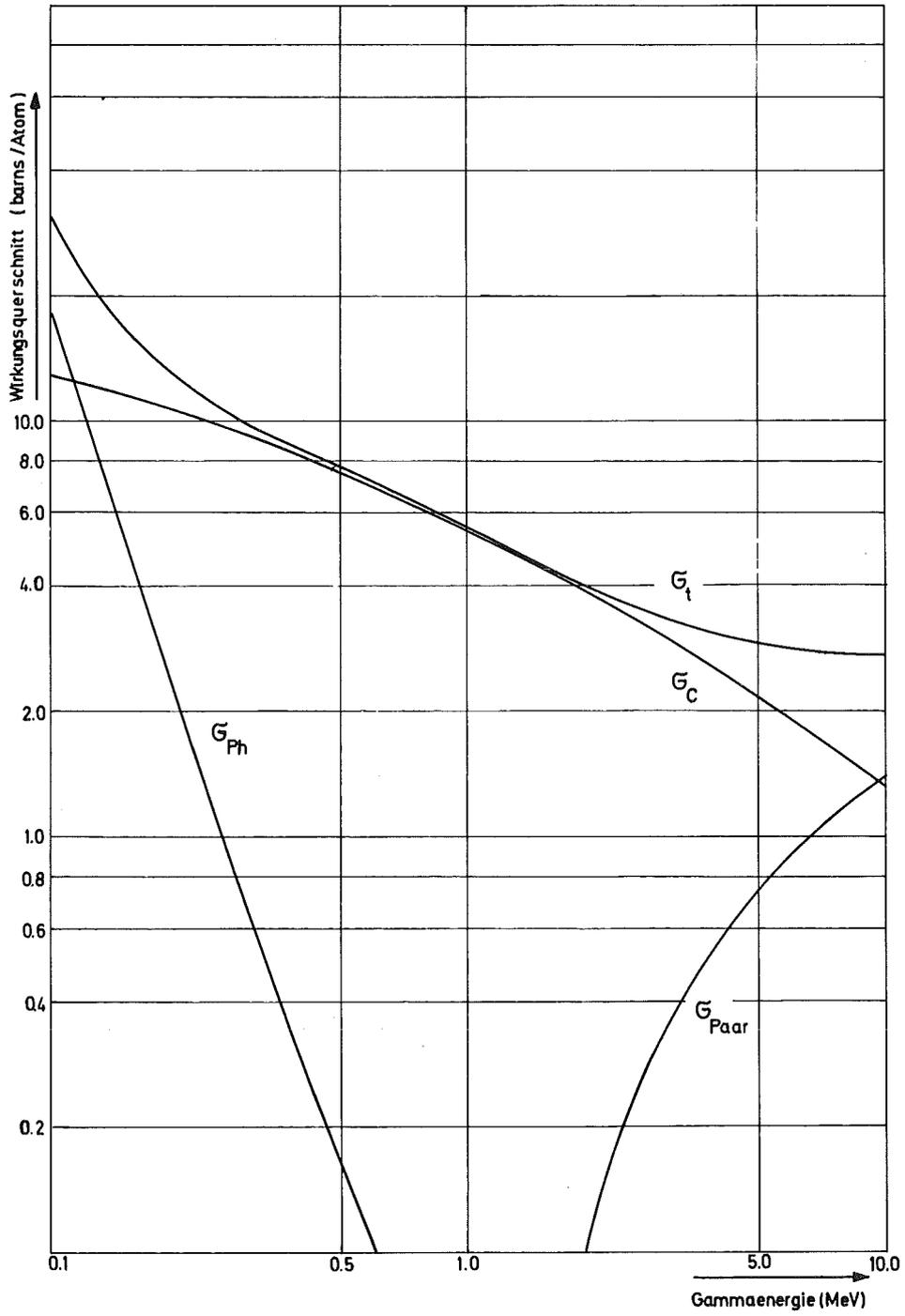


Abb.7  $\sigma_{ph}$ ,  $\sigma_c$ ,  $\sigma_{Paar}$  und  $\sigma_{total}$  für Eisen [8]

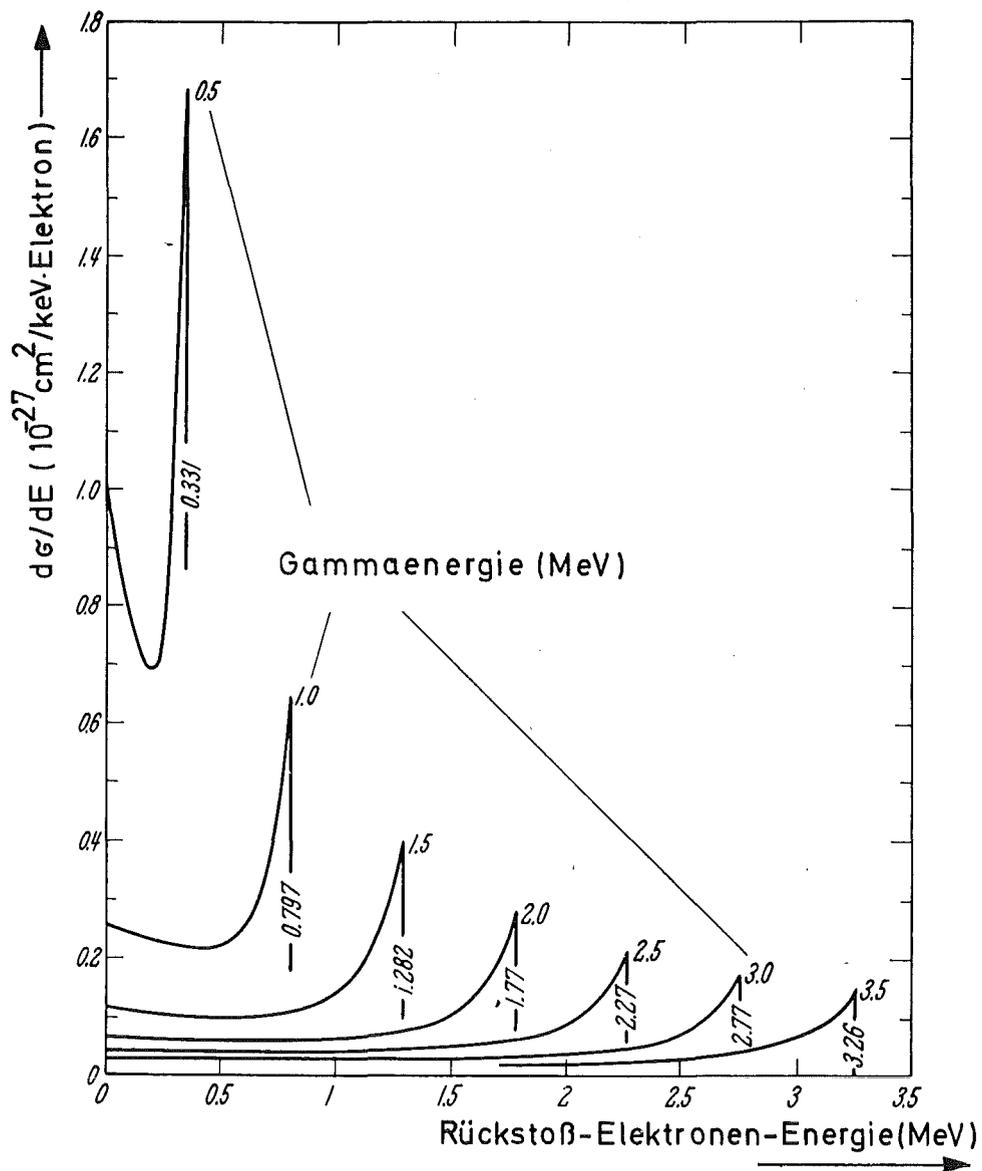


Abb. 8 Compton-Rückstoß-Elektronen-Spektren nach (12) [9]

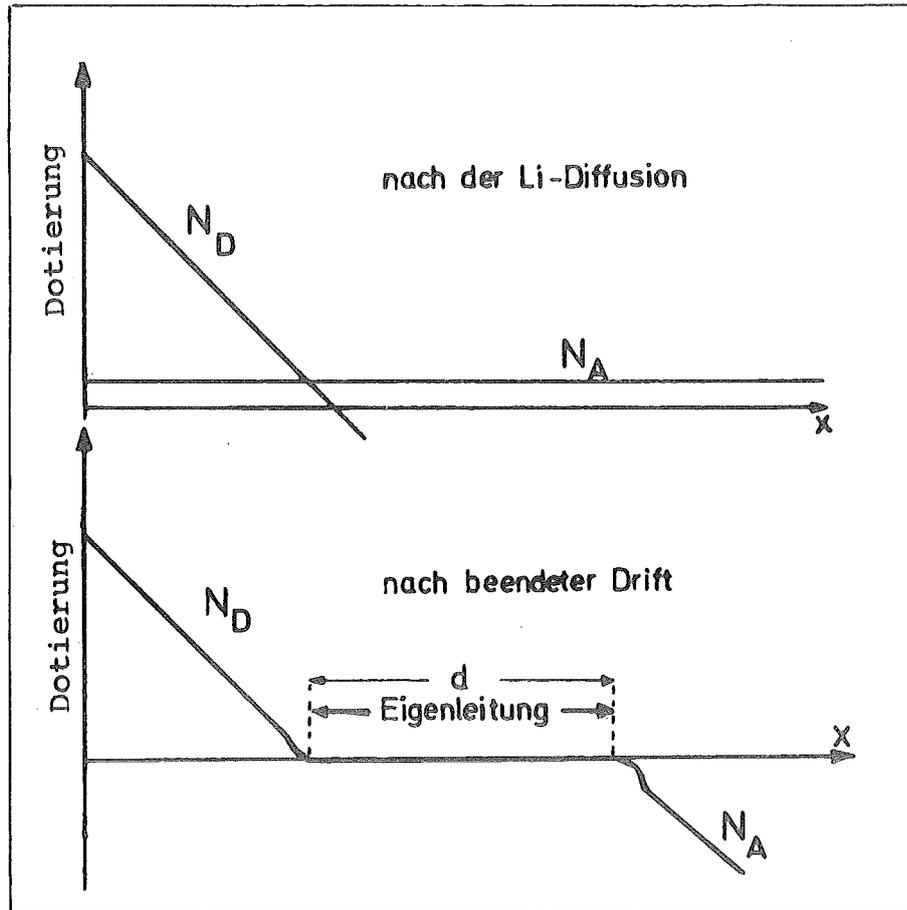


Abb.9 Herstellung eines p-i-n-Übergangs  
Schematisches Konzentrationsprofil  
 $N_D$ : Donatorkonzentration,  $N_A$ : Akzeptorkonzentration [10]

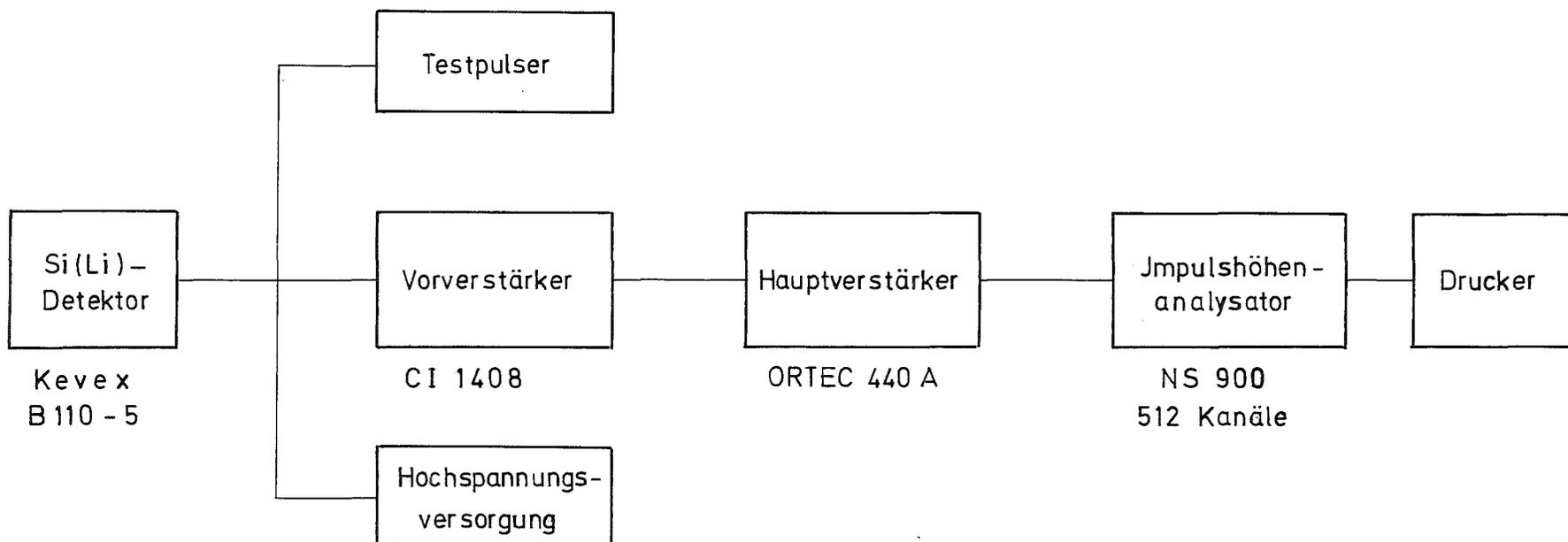


Abb. 10 Schema der Meßanordnung

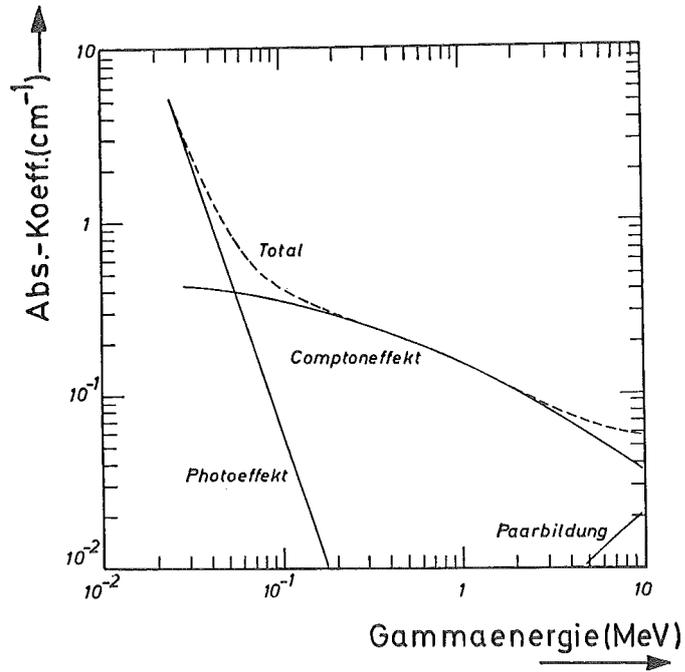


Abb.11  $\gamma$ -Absorptionskoeffizienten für Silizium [7]

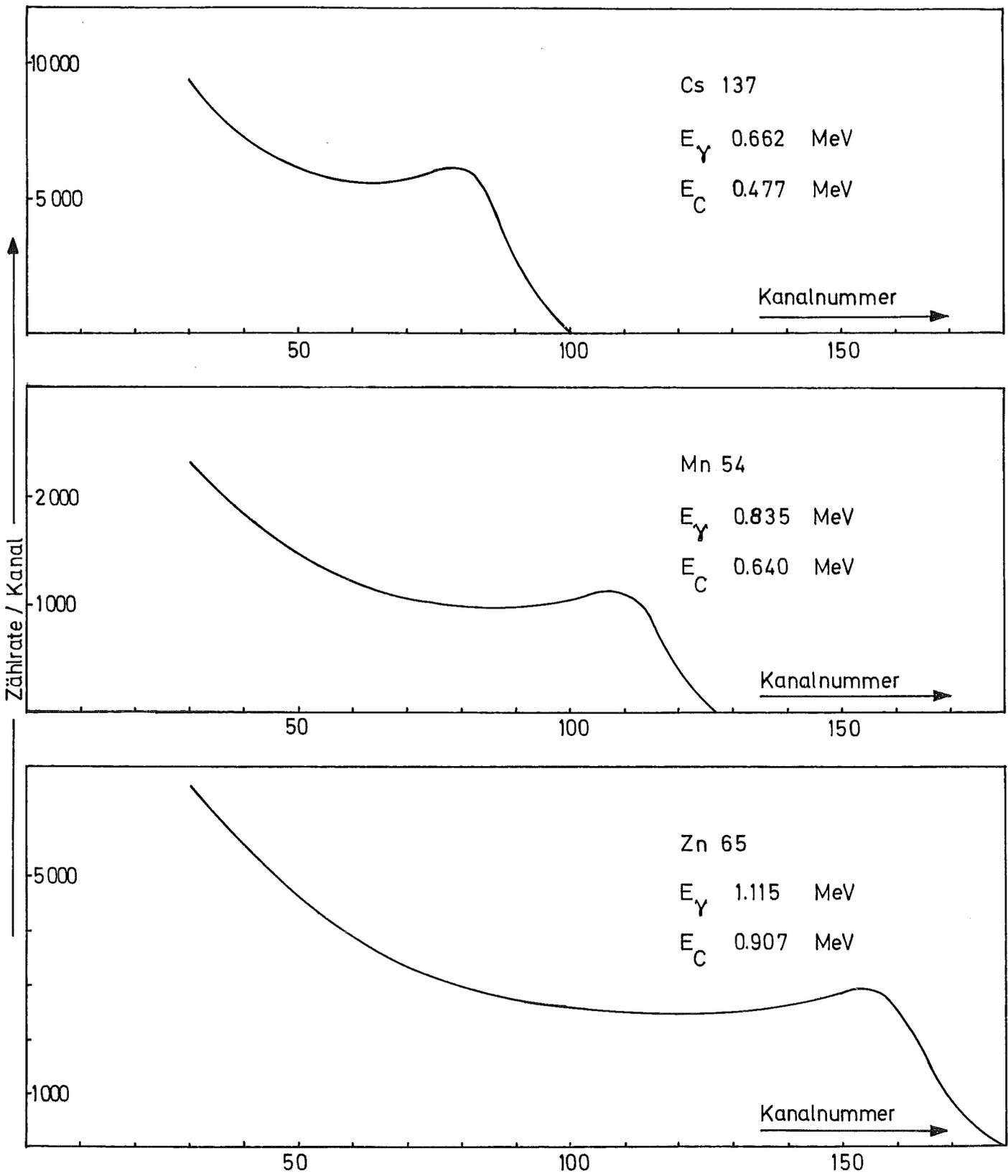


Abb. 12 Gemessene Compton-Spektren von Cs-137, Mn-54, Zn-65

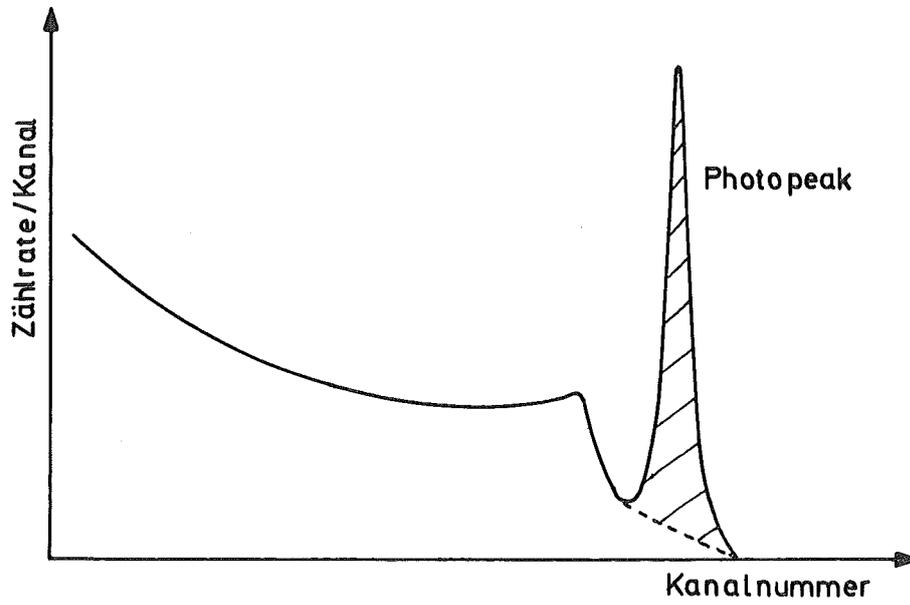


Abb.13 Schema des mit dem Ge(Li)-Spektrometer aufgenommenen  $\gamma$ -Spektrums

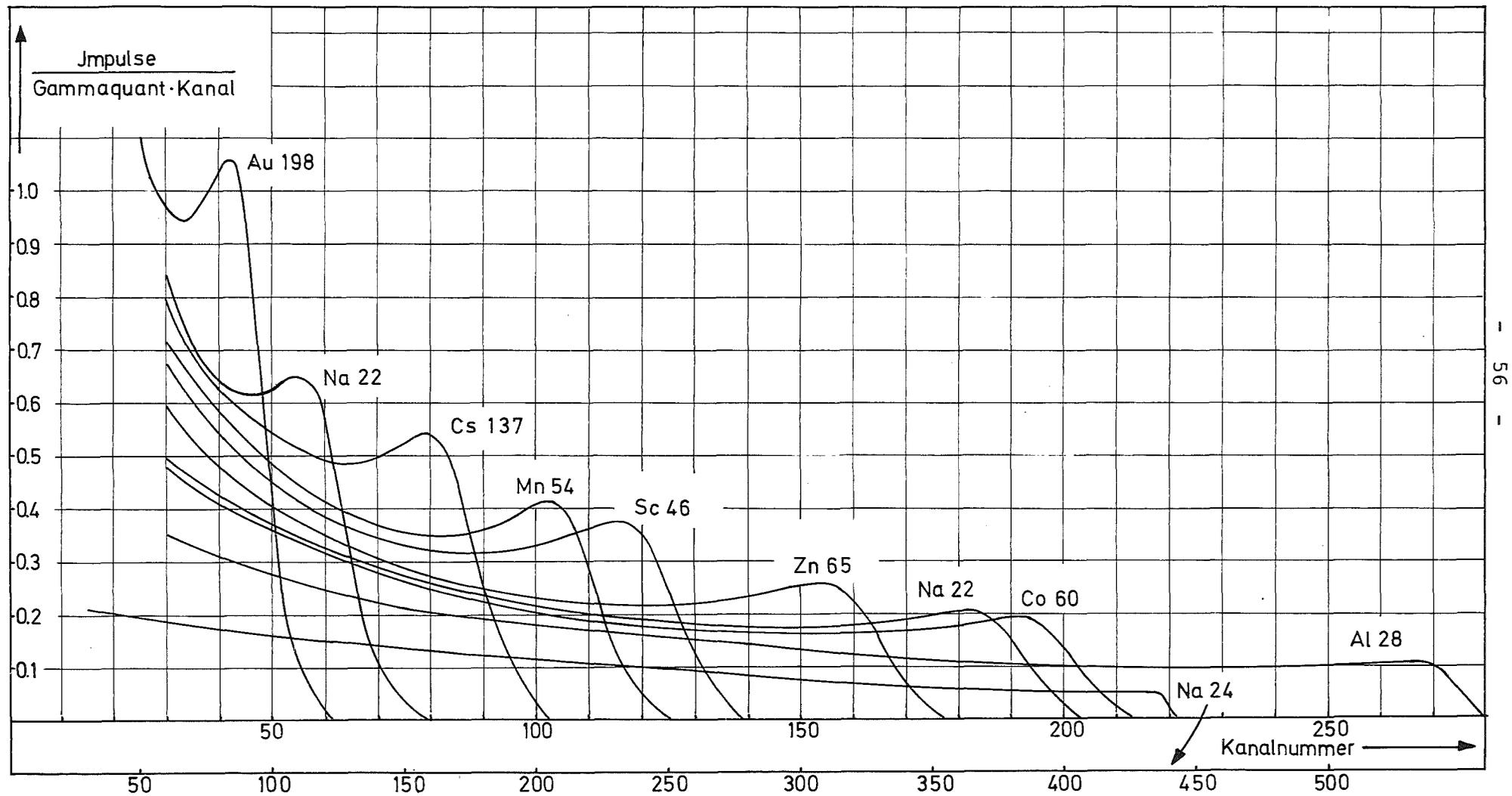


Abb. 14 Normierte Compton-Spektren der Eichquellen

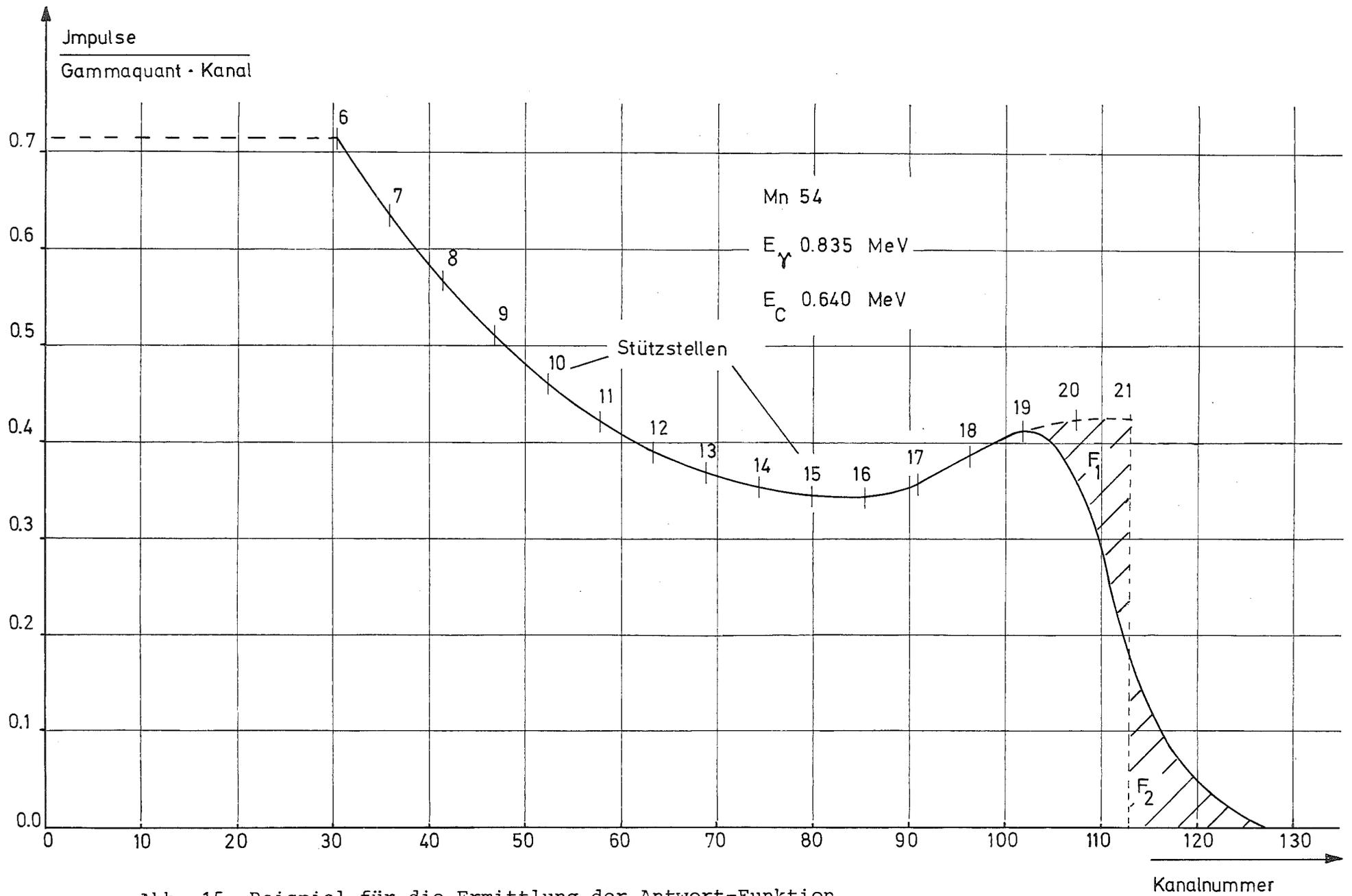


Abb. 15 Beispiel für die Ermittlung der Antwort-Funktion

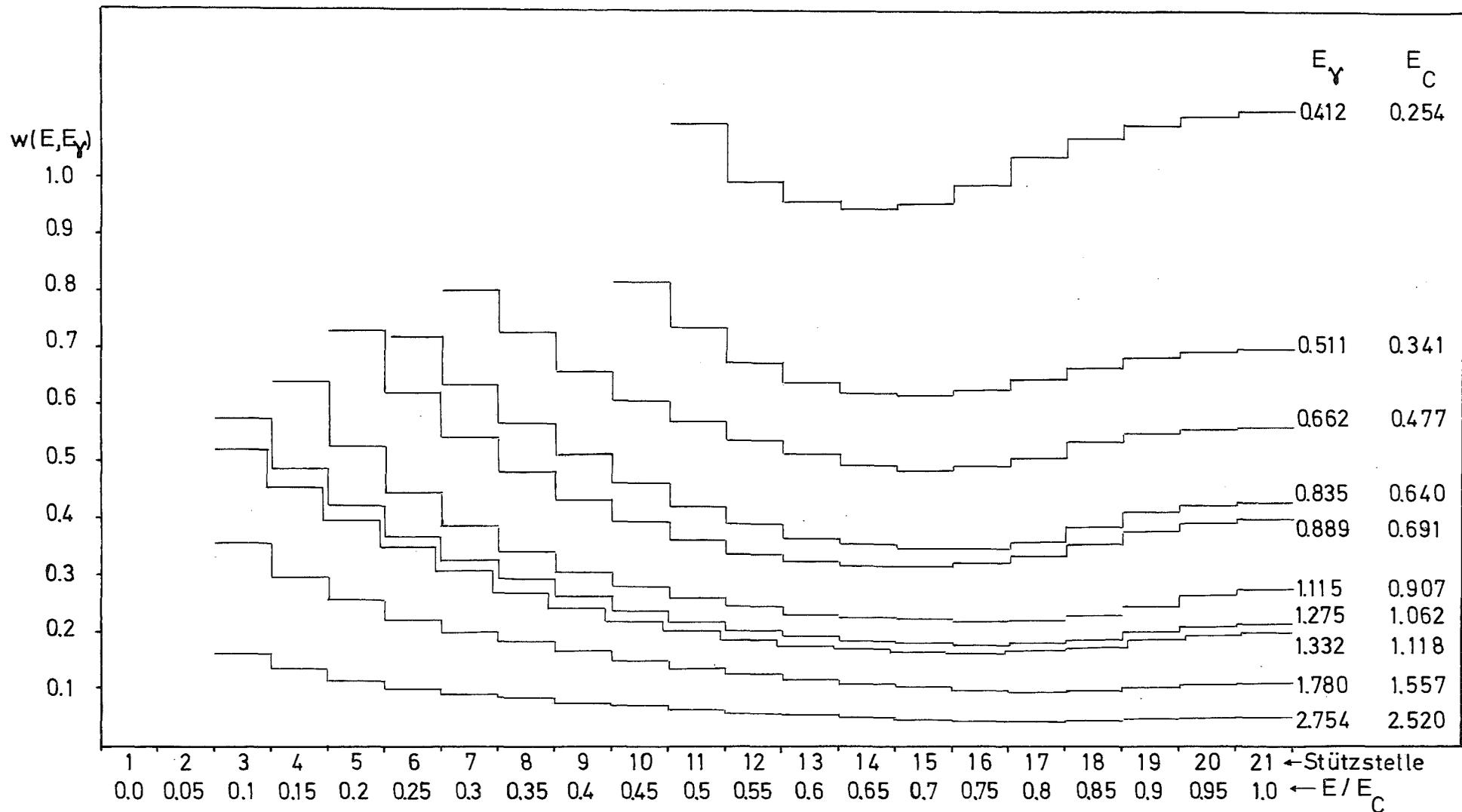


Abb. 16 Im Auswerteprogramm SPEC4C benutzte Antwort-Funktionen

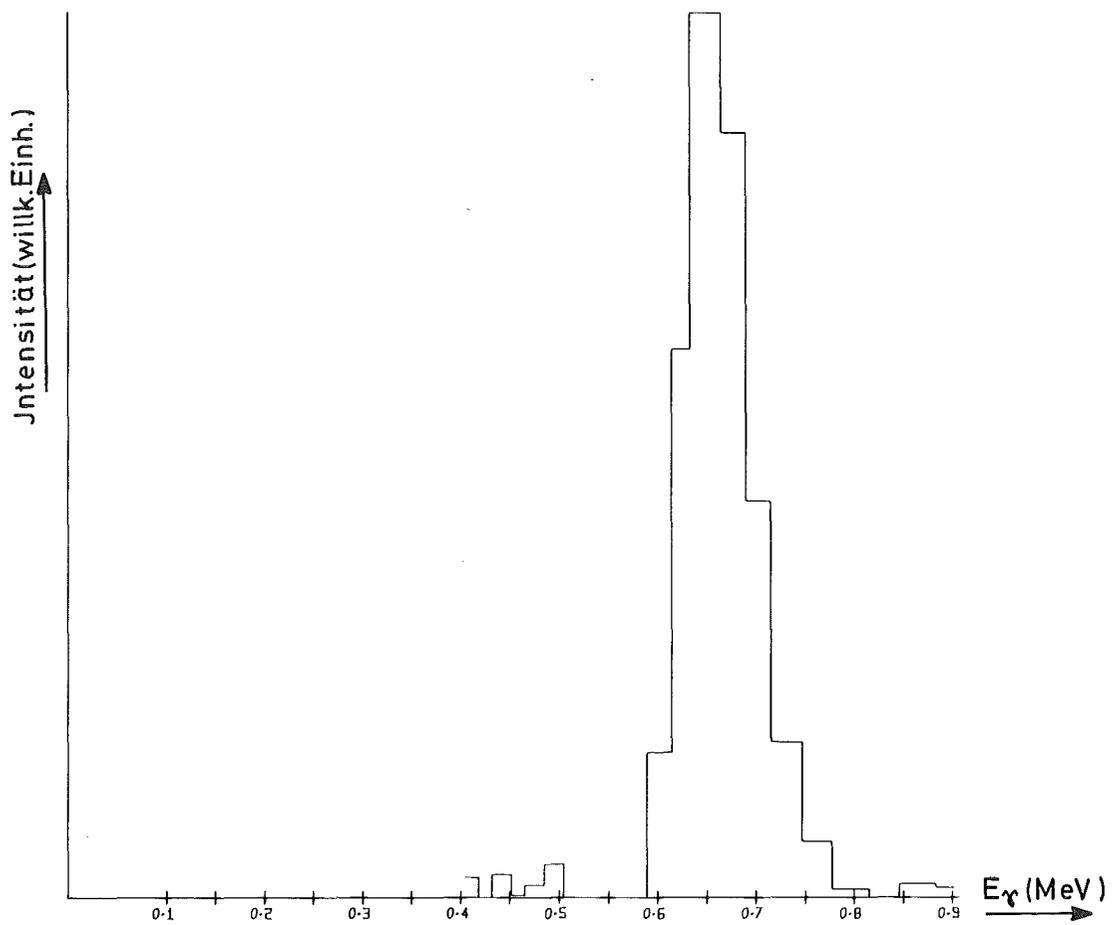
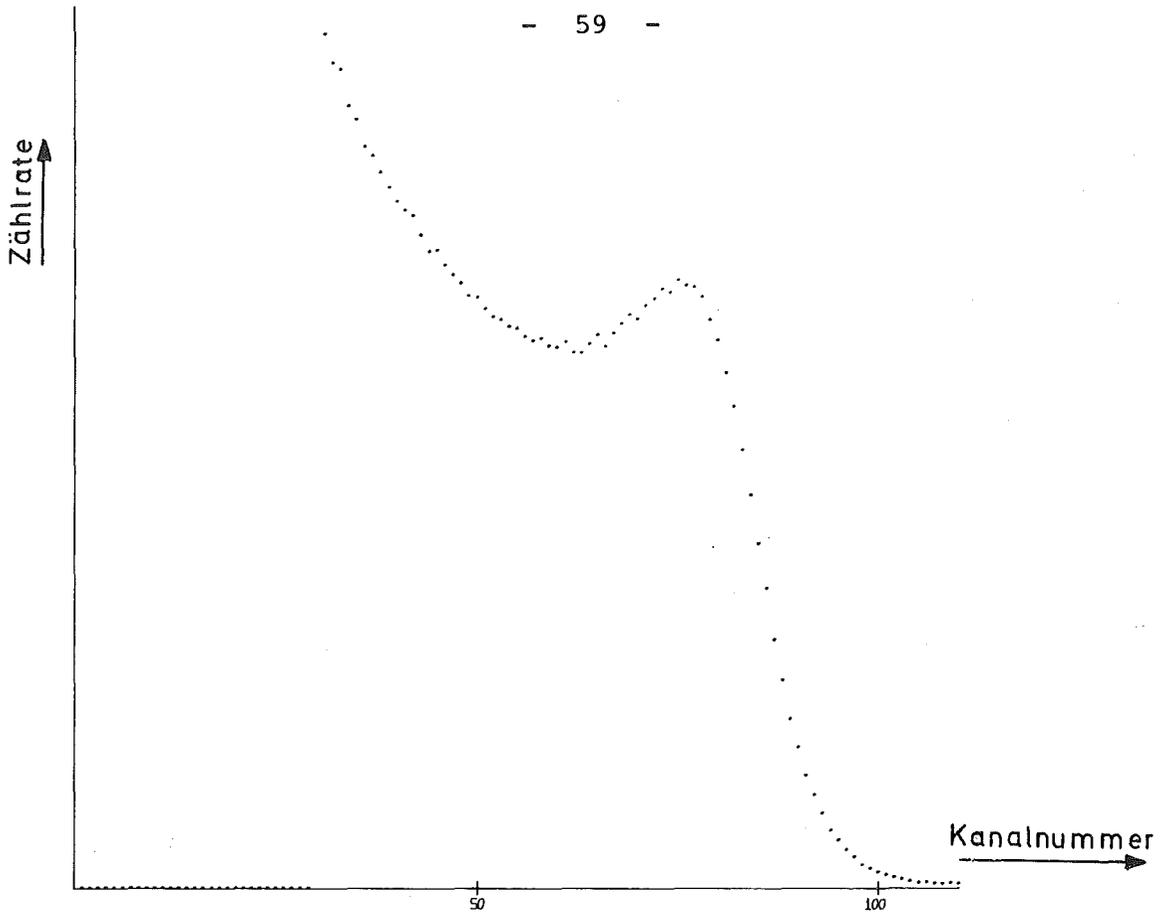


Abb.17a Gemessene Compton-Verteilung und daraus berechnetes  $\gamma$ -Spektrum von Cs-137

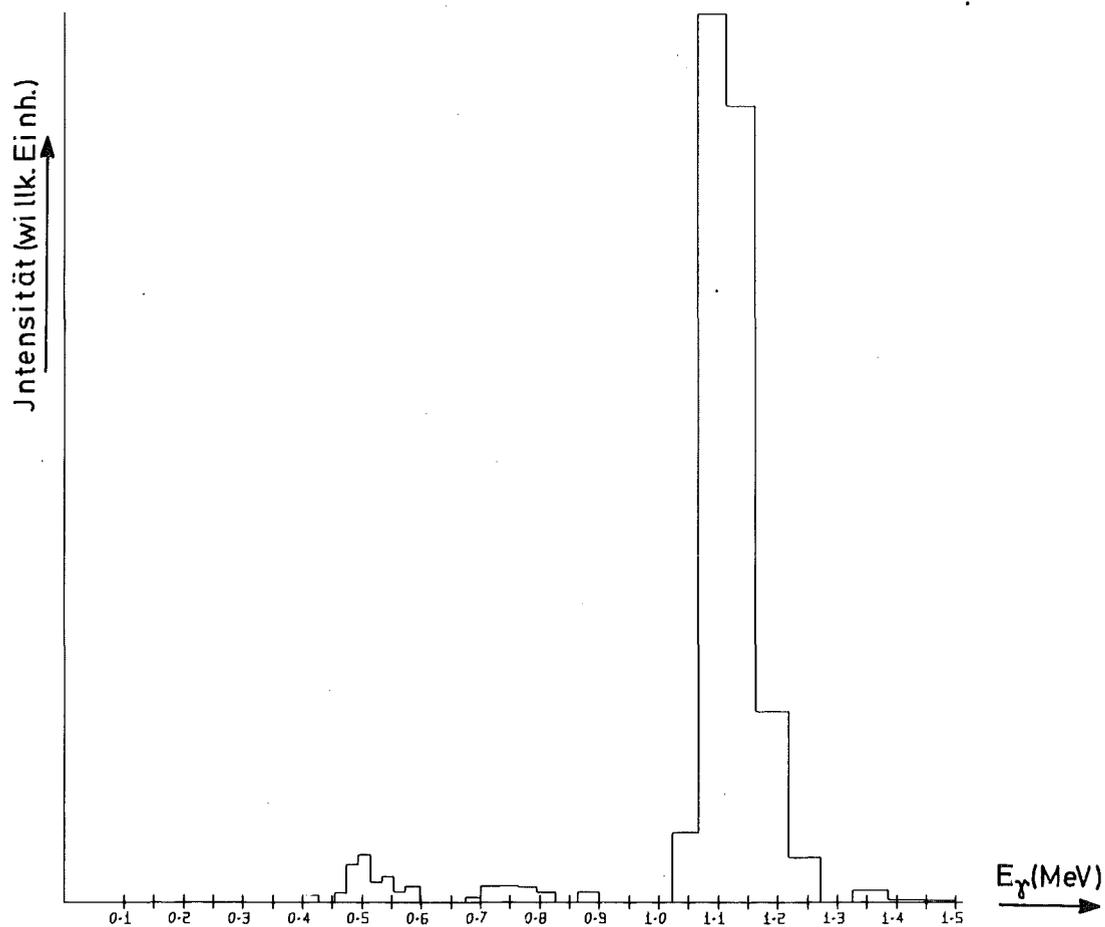
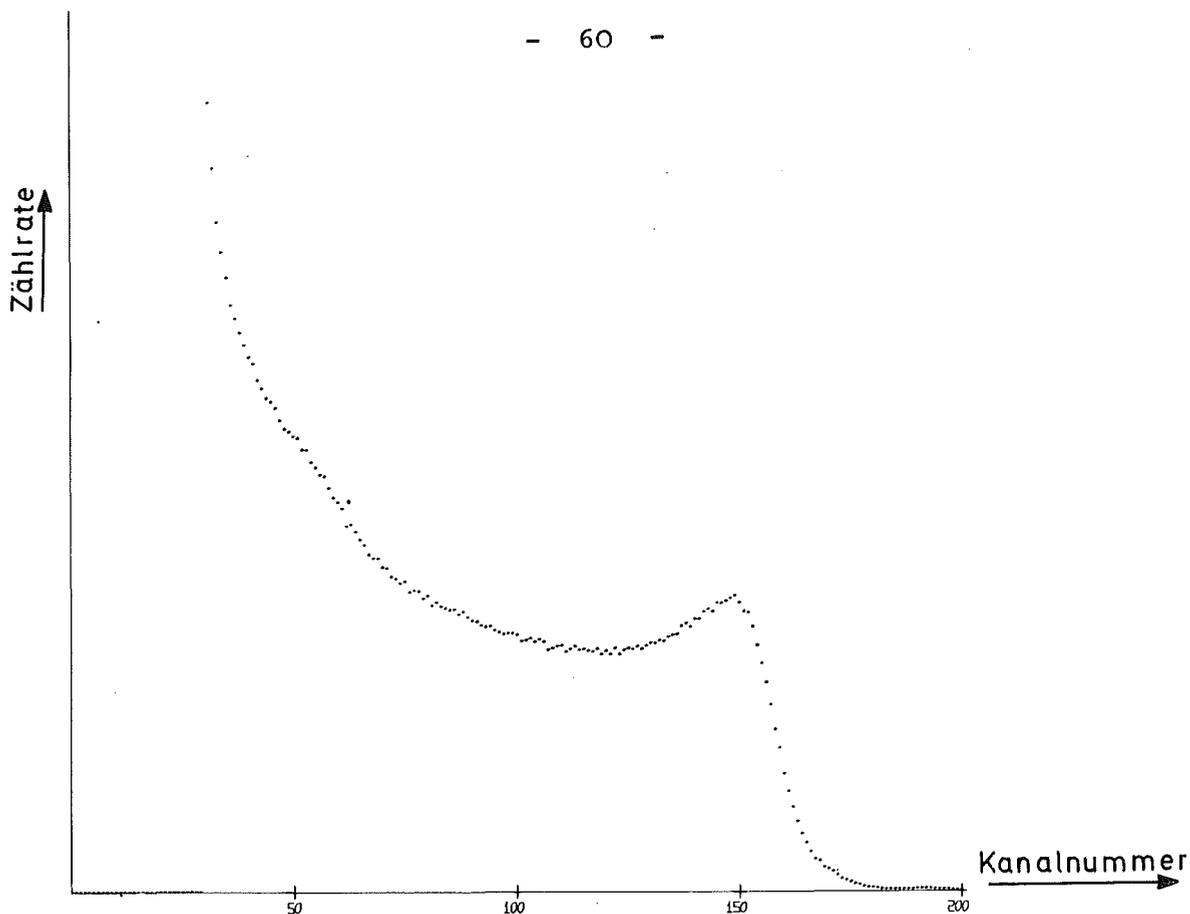


Abb. 17b Gemessene Compton-Verteilung und daraus berechnetes  $\gamma$ -Spektrum von Zn-65

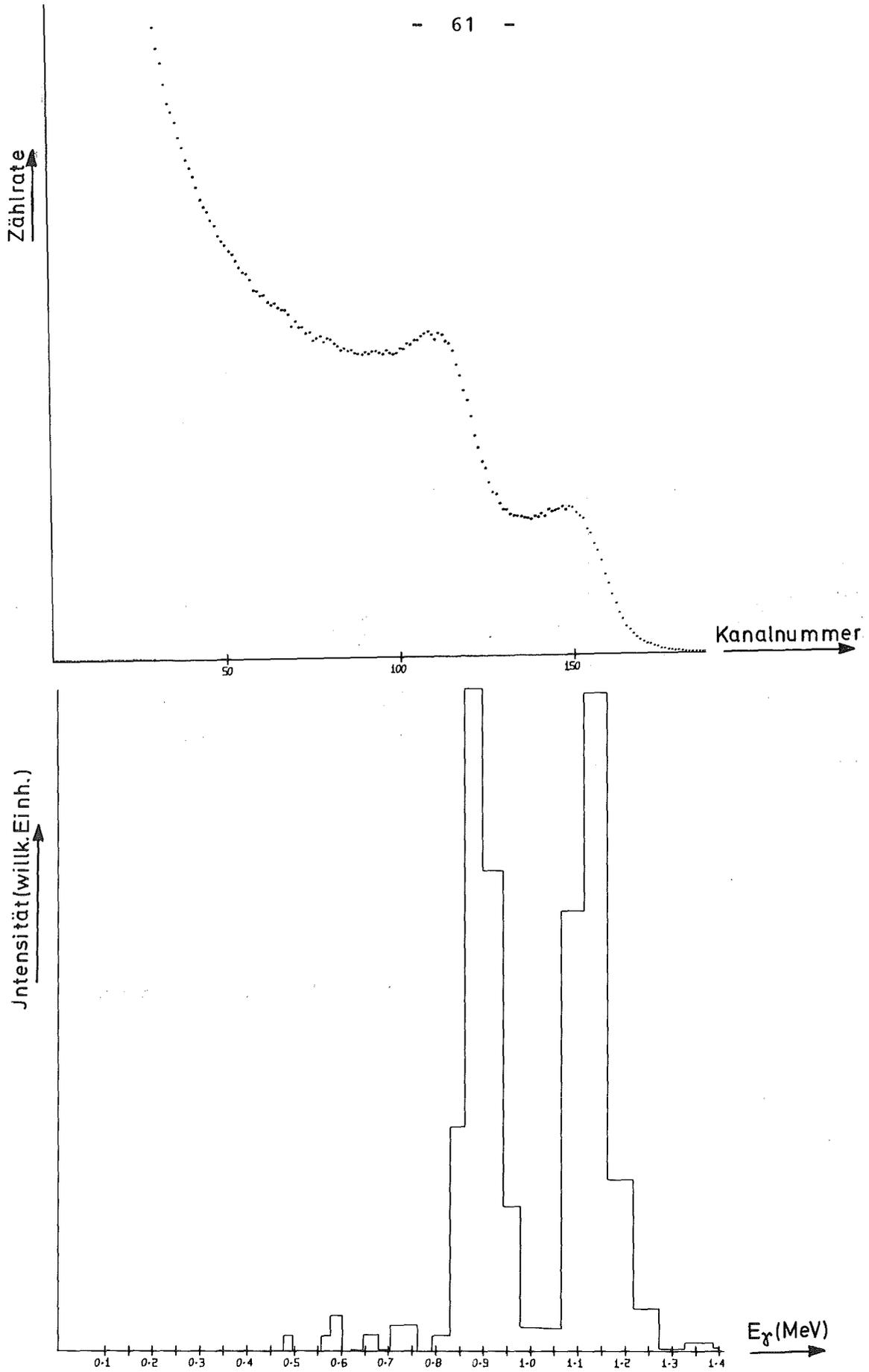


Abb. 17c Gemessene Compton-Verteilung und daraus berechnetes  $\gamma$ -Spektrum von Sc-46

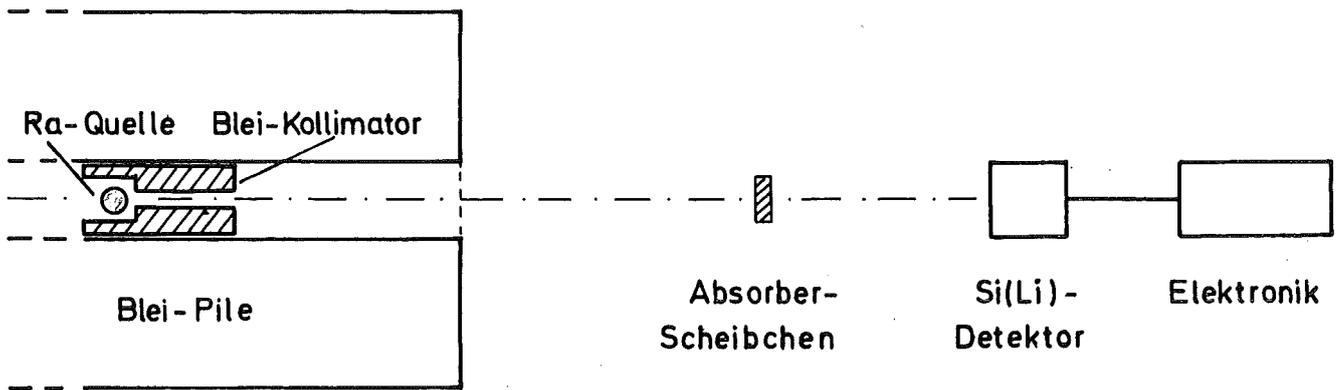


Abb. 18 Versuchsaufbau für die Radium-Testmessungen

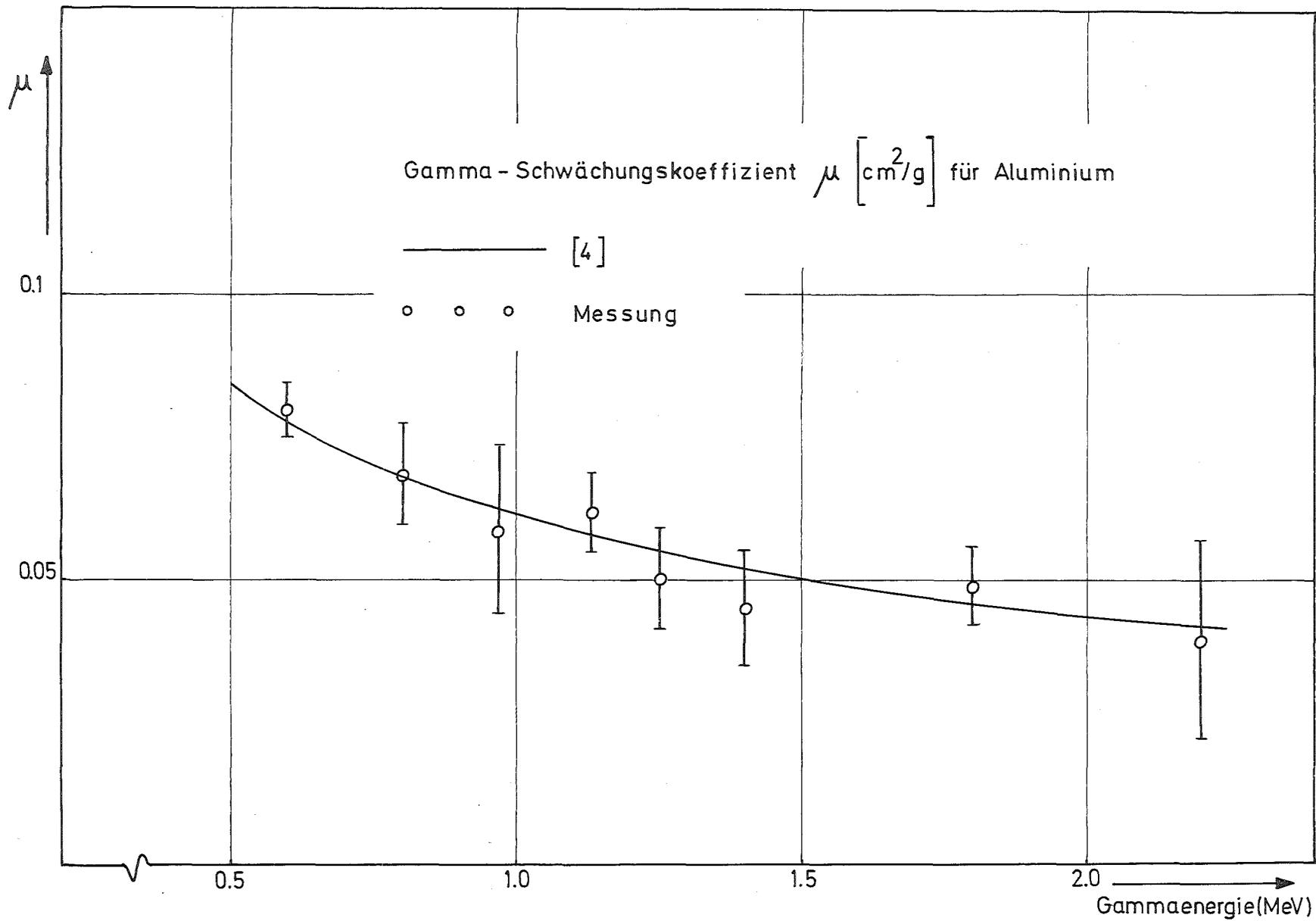


Abb.19a Radium-Testmessung:  $\gamma$ -Schwächungskoeffizient für Aluminium

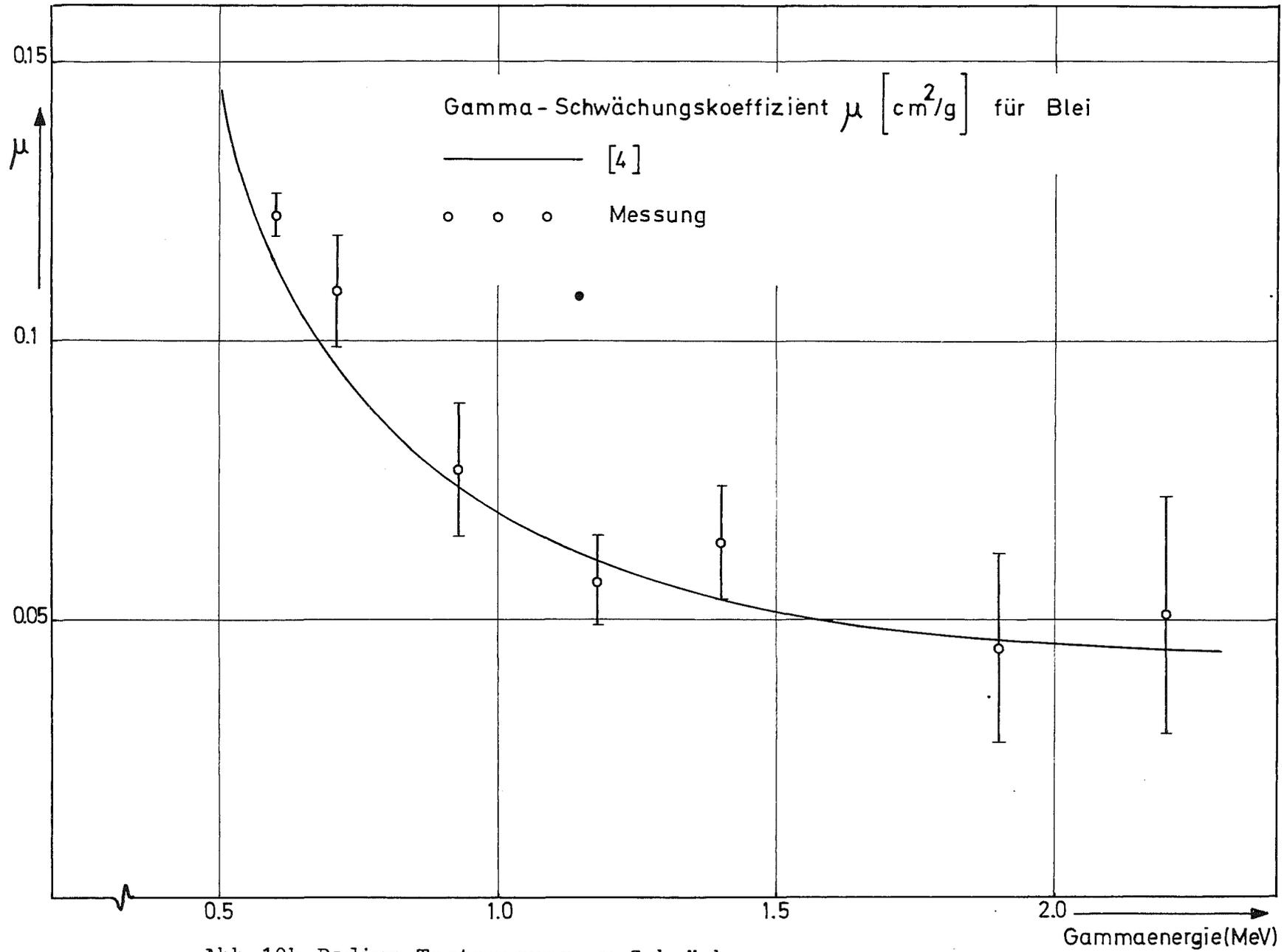


Abb.19b Radium-Testmessung:  $\gamma$ -Schwächungskoeffizient für Blei

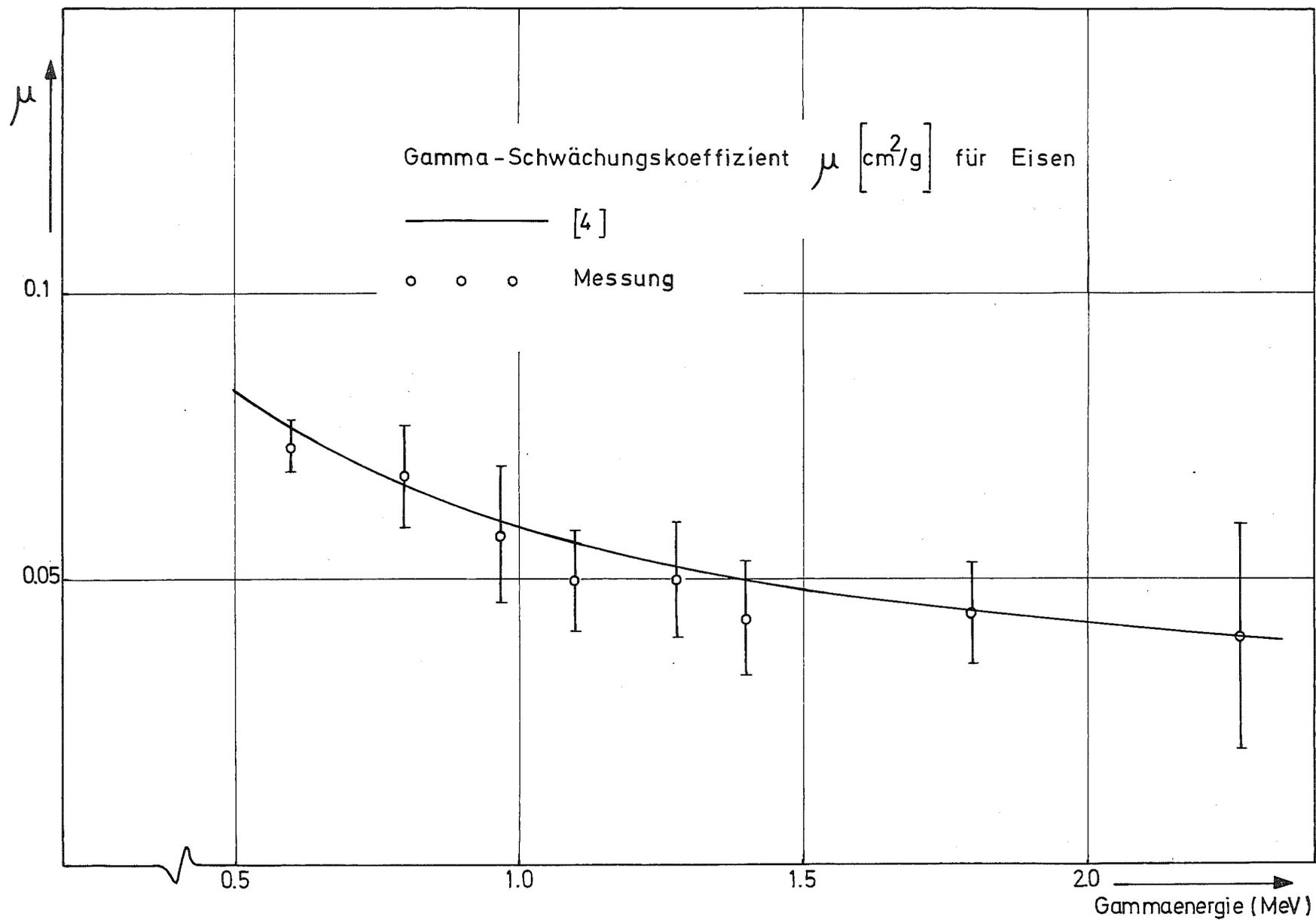


Abb.19c Radium-Testmessung:  $\gamma$ -Schwächungskoeffizient für Eisen

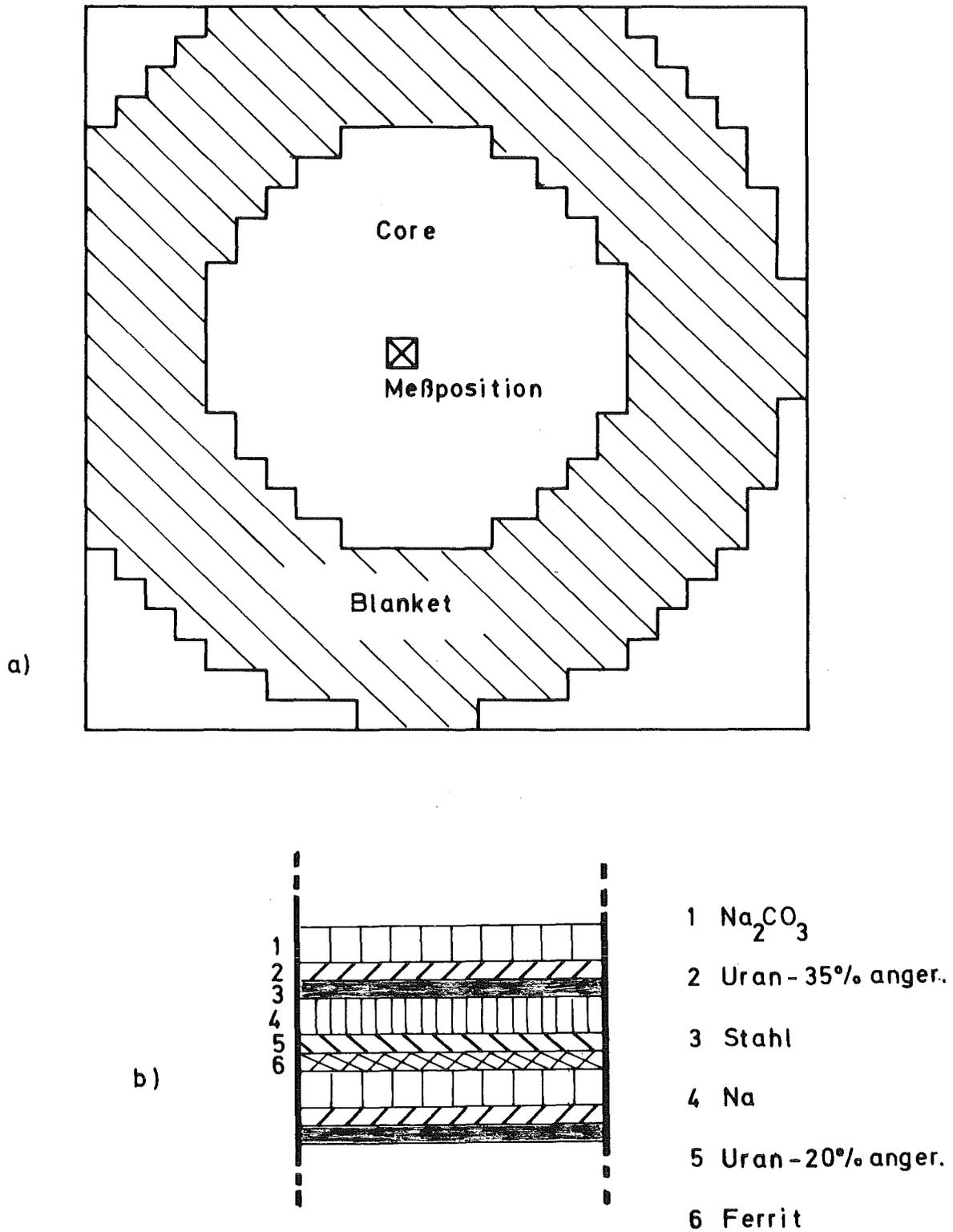


Abb.20 a) Core-Konfiguration SNEAK 9C-1 (Uran-Core)  
b) Zusammensetzung eines 9C-1-Brennelements (Corebereich)

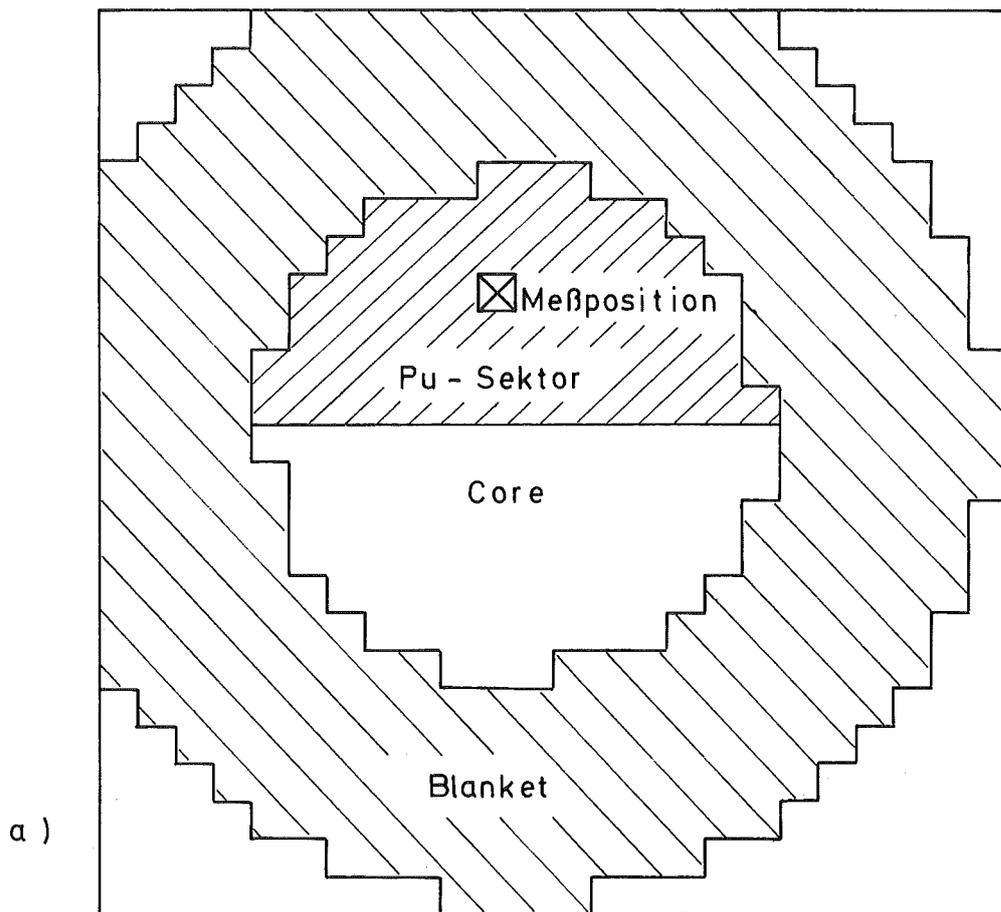
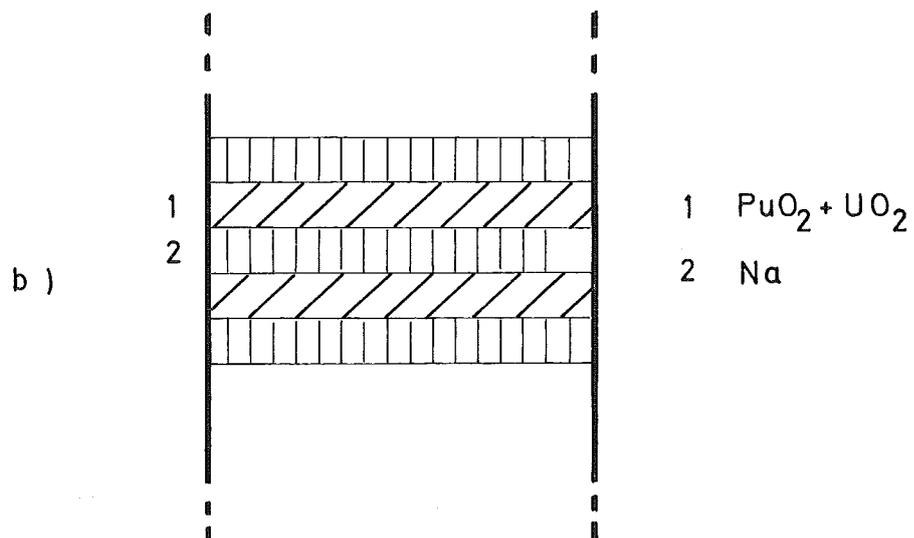


Abb.21 a) Core-Konfiguration SNEAK 9C-2 (Pu-Core) zum Zeitpunkt der Messung  
b) Zusammensetzung eines 9C-2-Brennelements (Corebereich)



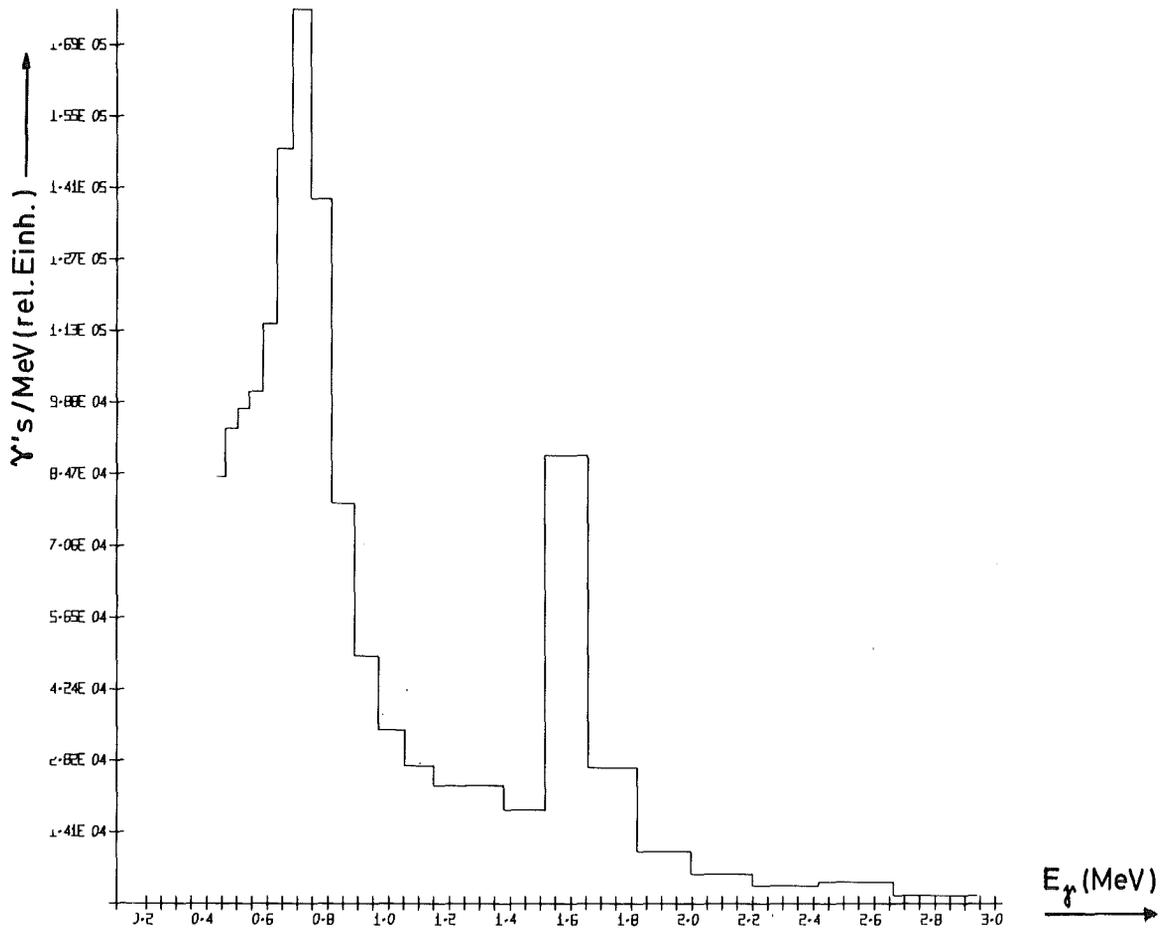


Abb.22 Untergrund- $\gamma$ -Spektrum SNEAK 9C-1, Position 17/19 - axiale Mittelebene (Core); Reaktor abgeschaltet.

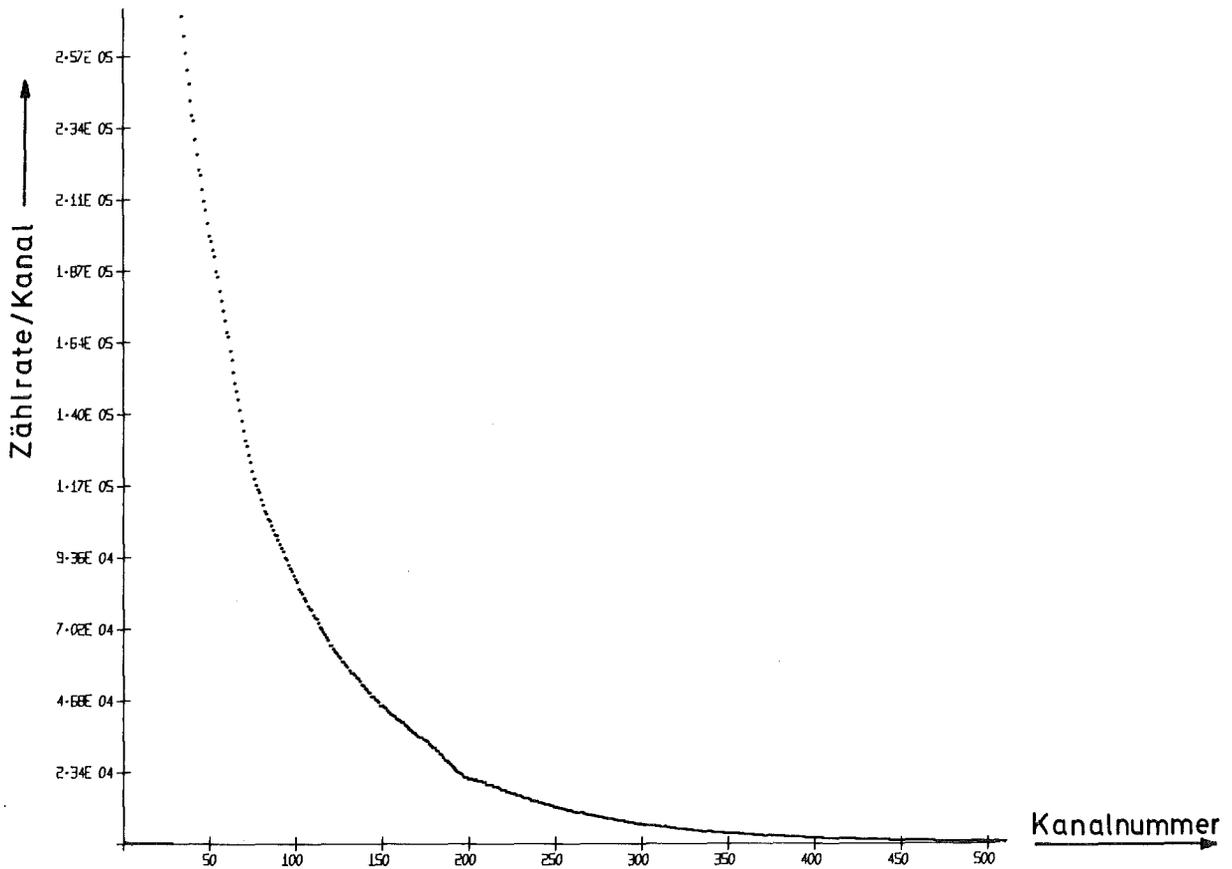


Abb.23a Compton-Rückstoß-Spektrum SNEAK 9C-1, Position 17/19 - axiale Mittelebene (Core); Reaktorleistung 50 mW; Untergrund subtrahiert.

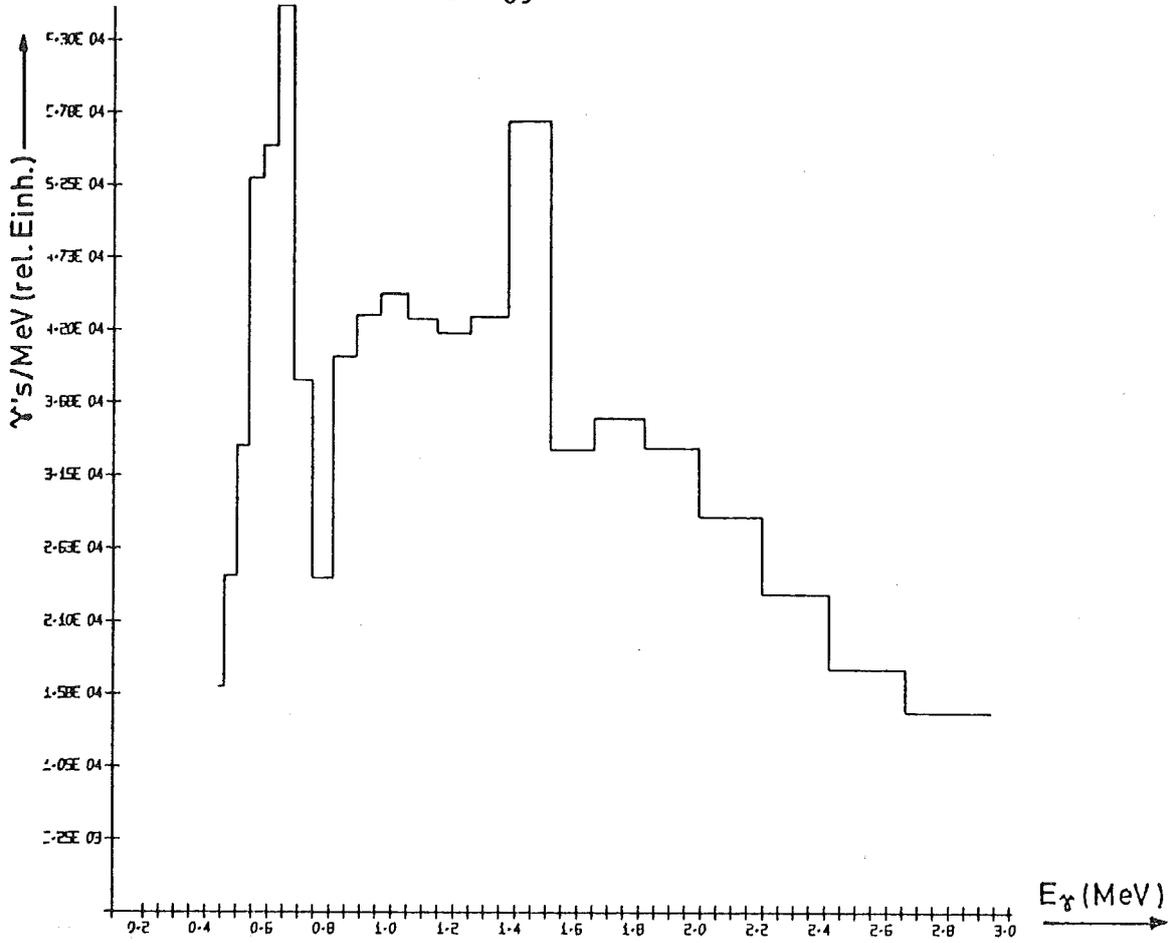


Abb.23b  $\gamma$ -Spektrum (Untergrund korrigiert) SNEAK 9C-1, Position 17/19 axiale Mittelebene (Core); Reaktorleistung 50 mW.

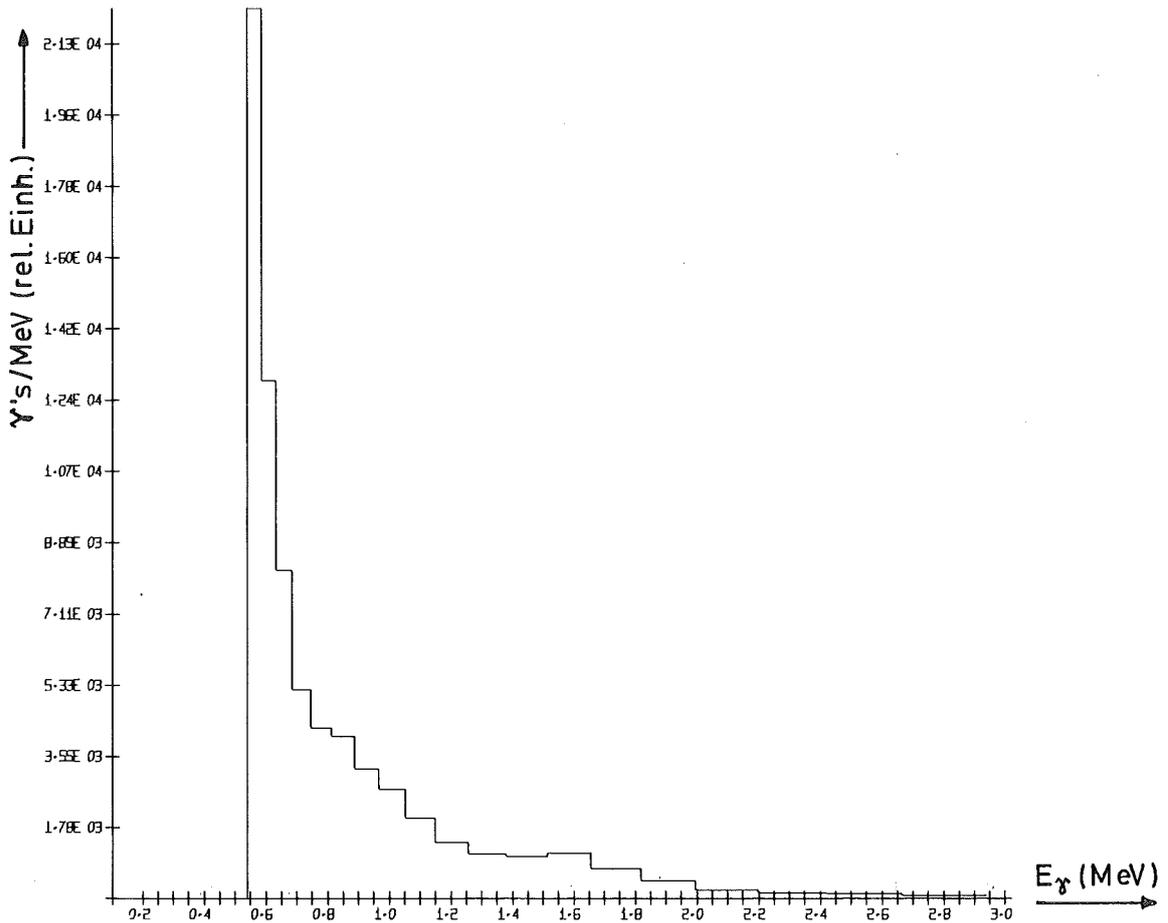


Abb.24 Untergrund- $\gamma$ -Spektrum SNEAK 9C-1, Position 17/19 - axiales Blanket; Reaktor abgeschaltet.

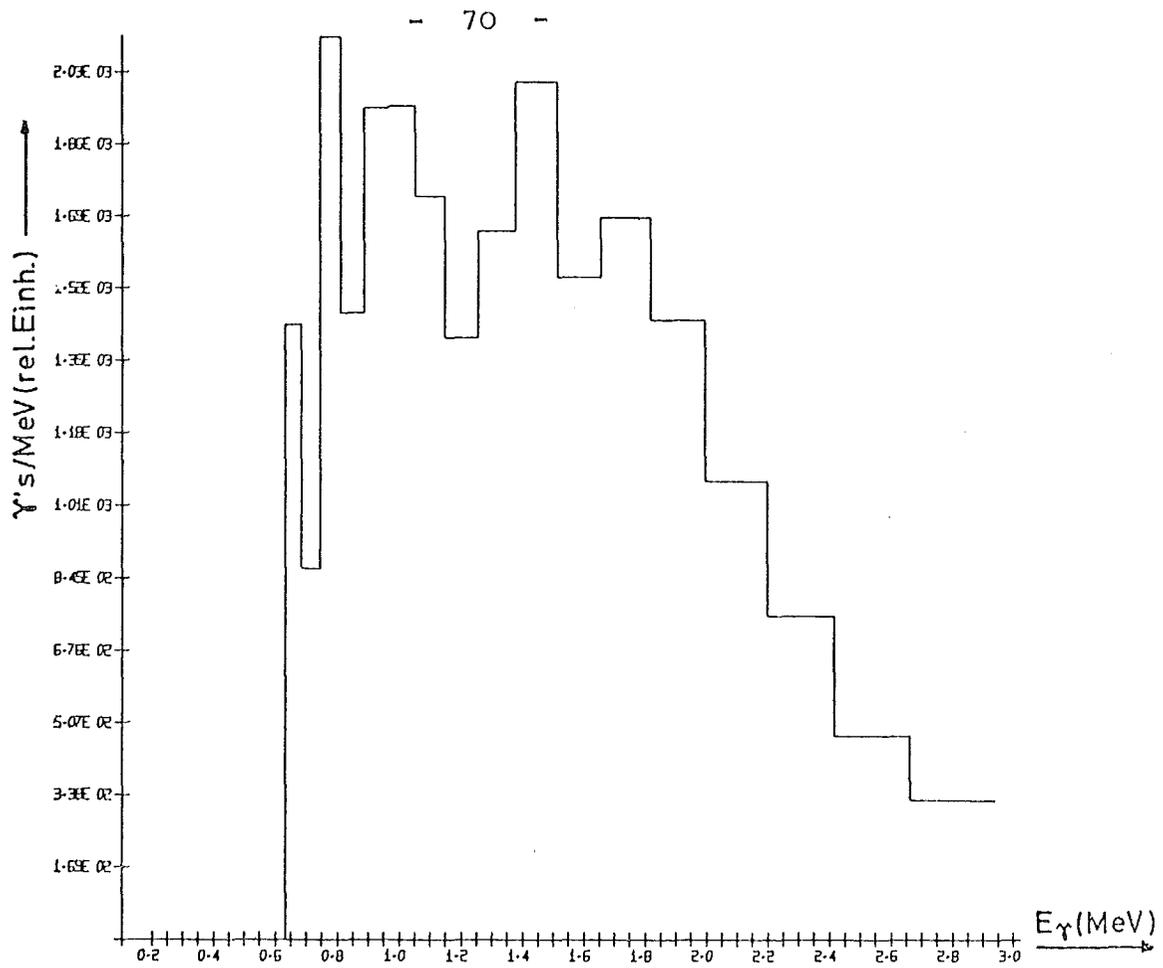


Abb.25  $\gamma$ -Spektrum (Untergrund korrigiert) SNEAK 9C-1, Position 17/19 axiales Blanket; Reaktorleistung 50 mW.

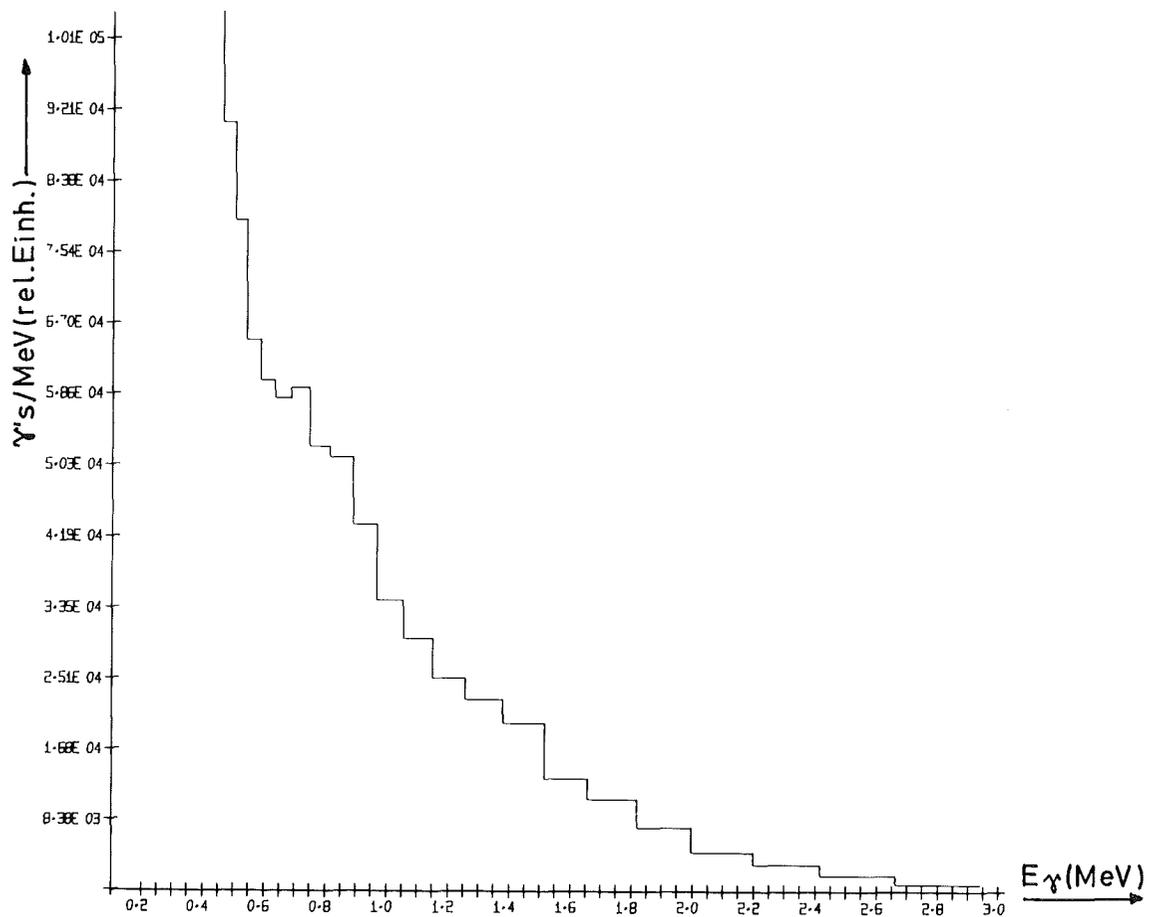


Abb.26 Untergrund- $\gamma$ -Spektrum SNEAK 9C-2, Position 17/23 - axiale Mittelebene (Core); Reaktor abgeschaltet.

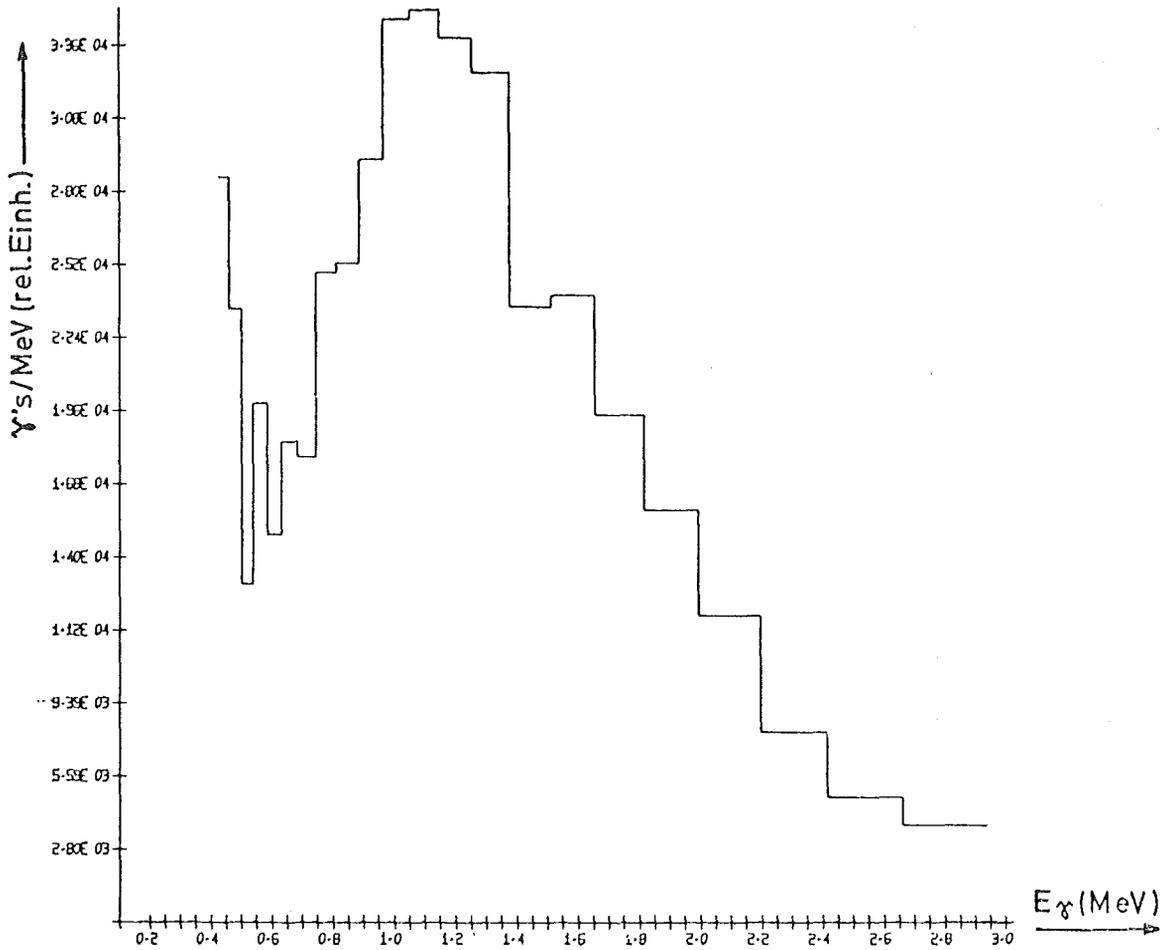


Abb.27  $\gamma$ -Spektrum (Untergrund korrigiert) SNEAK 9C-2, Position 17/23 axiale Mittelebene (Core); Reaktorleistung 150 mW.

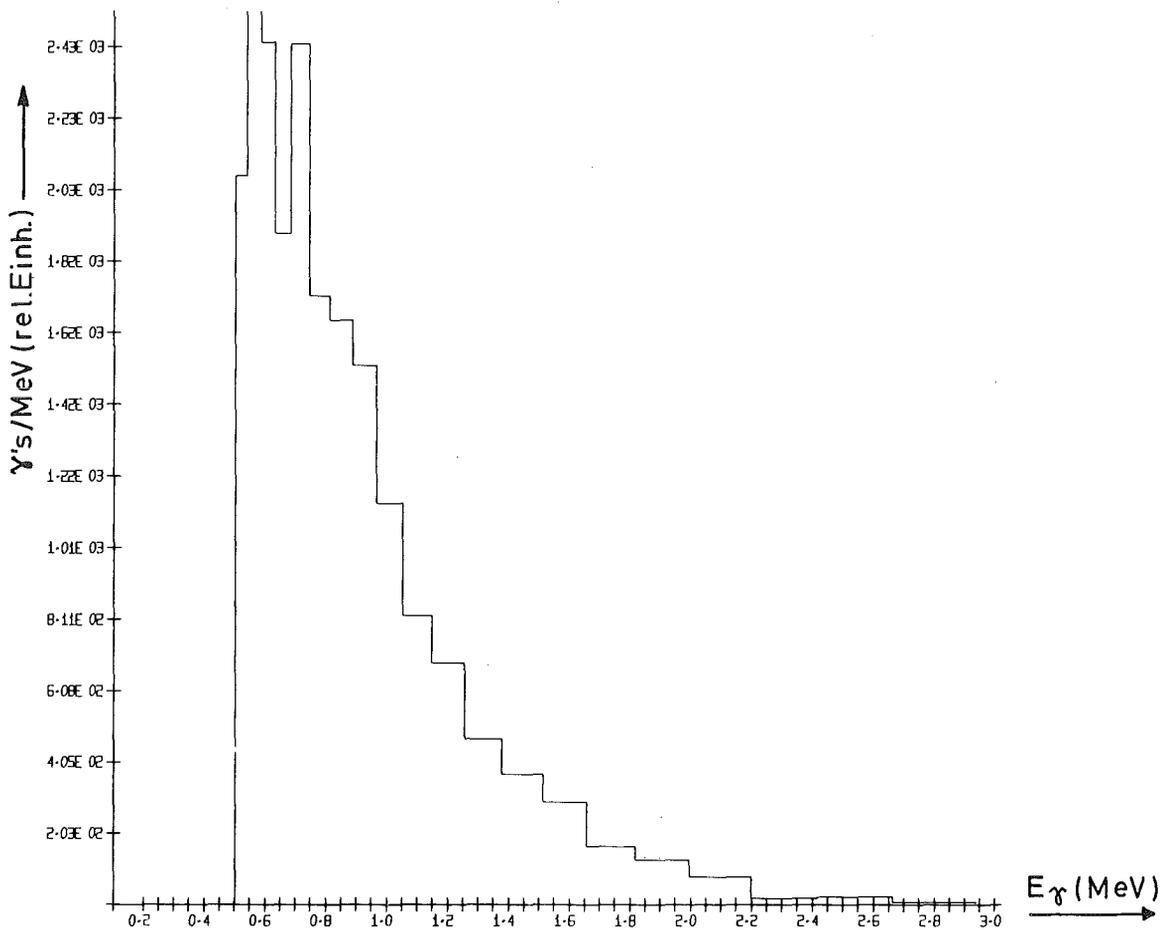


Abb.28 Untergrund- $\gamma$ -Spektrum SNEAK 9C-2, Position 17/23 - axiales Blanket; Reaktor abgeschaltet.

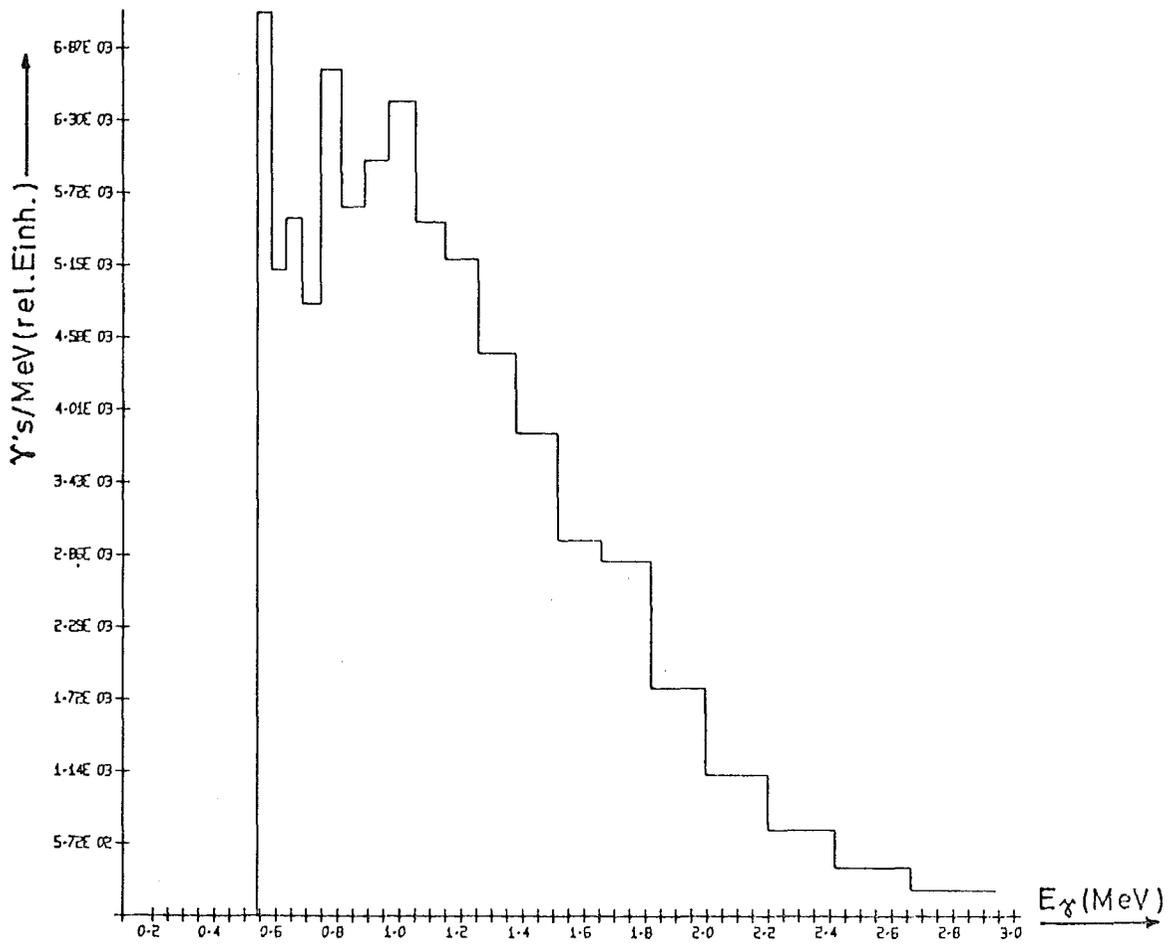


Abb.29  $\gamma$ -Spektrum (Untergrund korrigiert) SNEAK 9C-2, Position 17/23 axiales Blanket; Reaktorleistung 150 mW.

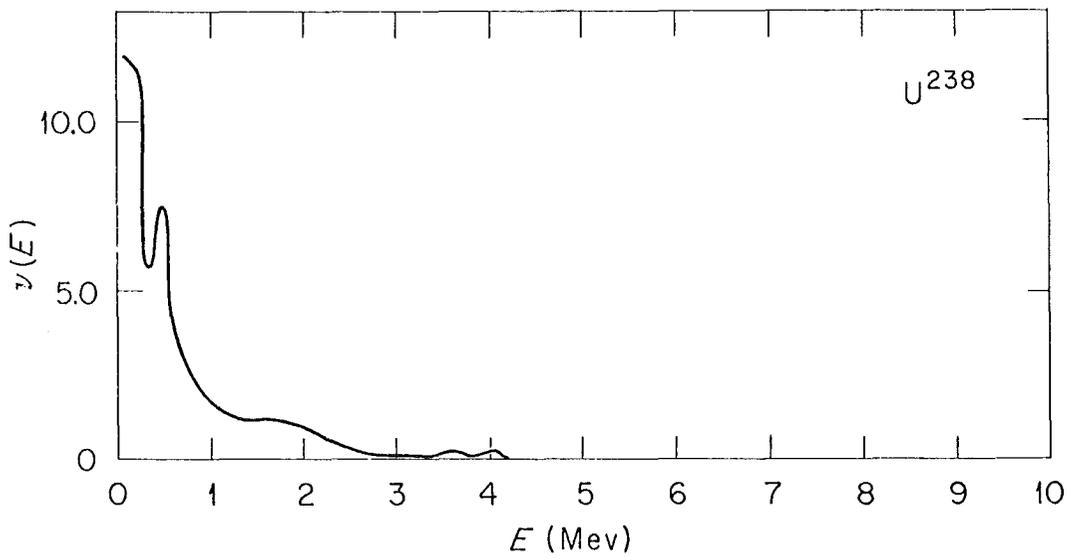


Abb.30  $\gamma$ -Spektrum aus thermischem Neutroneneinfang in  $^{238}\text{U}$  [15] ( $\nu(E) = \gamma's/MeV \cdot \text{Einfang}$ ).

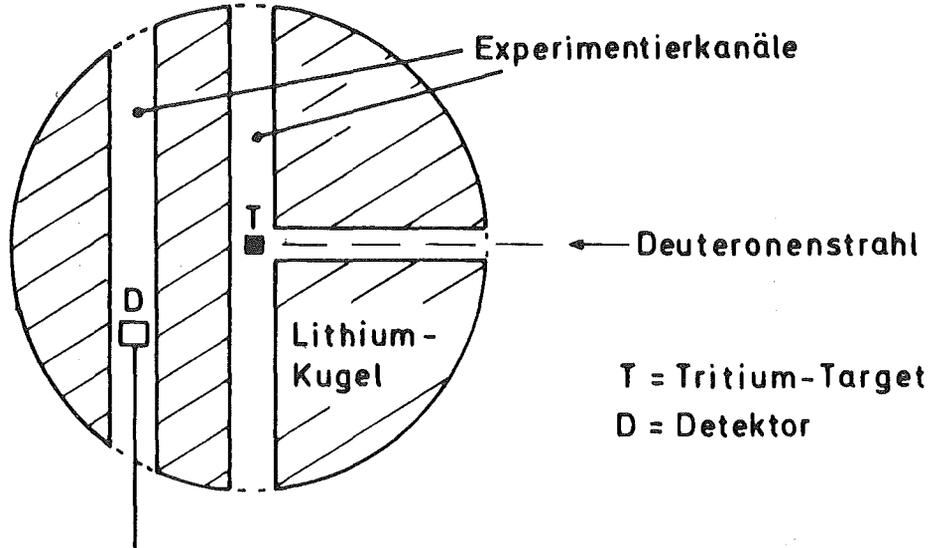


Abb.31 Schema der Versuchsanordnung für die Messungen an der Lithium-Kugel

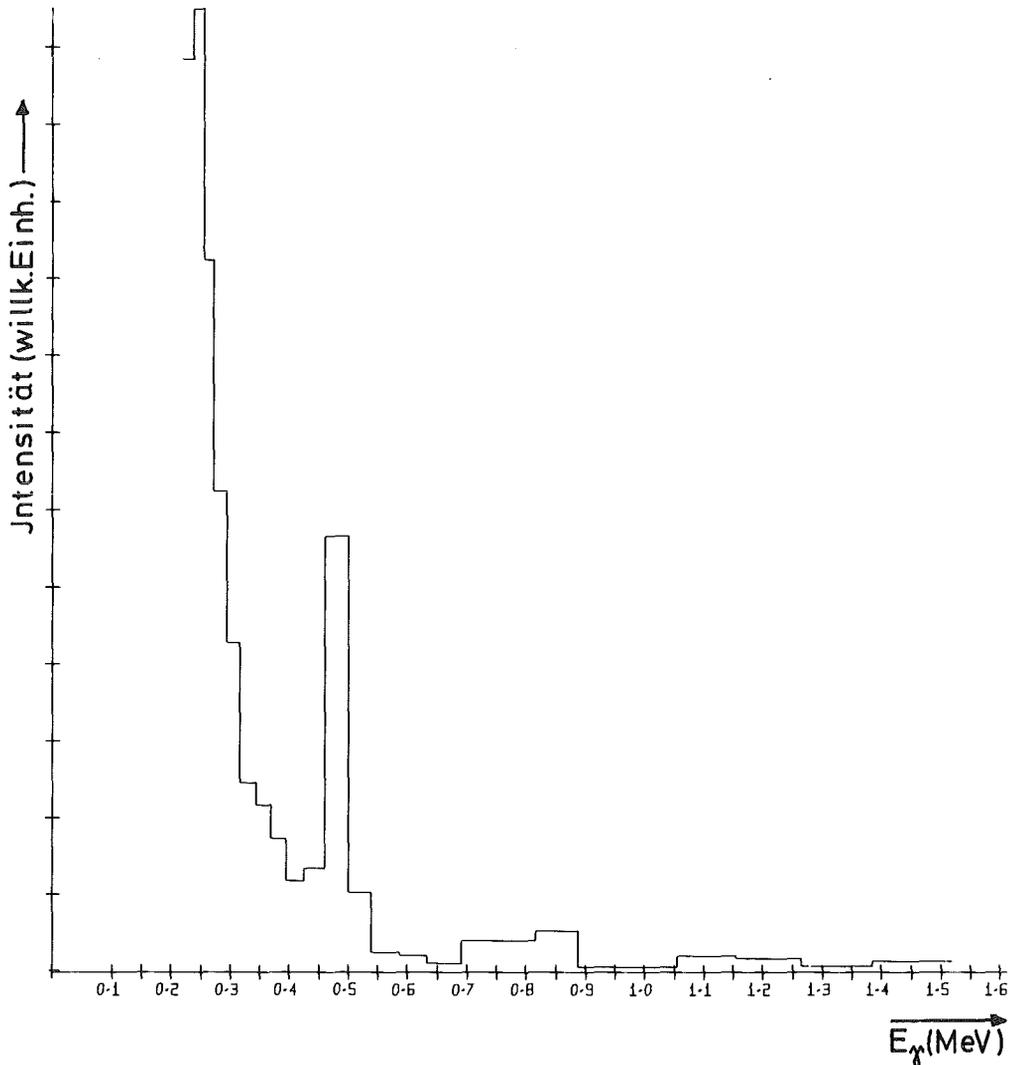


Abb.32  $\gamma$ -Spektrum in der Lithium-Kugel

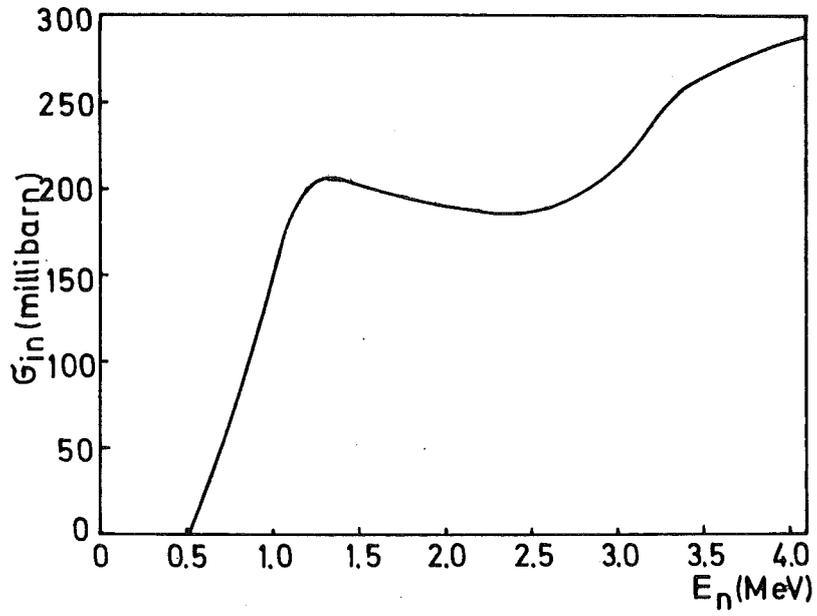


Abb.33 Wirkungsquerschnitt für die Produktion der 0,478 MeV- $\gamma$ -Linie über die inelastische Neutronenstreuung an  ${}^7\text{Li}$  [16].