

KfK 2673

Juli 1978

**Messung der Spaltquerschnitte
von ^{239}Pu und ^{240}Pu relativ zum
Spaltquerschnitt von ^{235}U und
Streuquerschnitt $\text{H}(n,p)$ in dem
Neutronenenergiebereich
zwischen 0,5 - 20 MeV**

K. Kari

Institut für Angewandte Kernphysik

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE GMBH

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Angewandte Kernphysik

KfK 2673

Messung der Spaltquerschnitte von ^{239}Pu und ^{240}Pu
relativ zum Spaltquerschnitt von ^{235}U und Streuquerschnitt H (n,p)
in dem Neutronenenergiebereich zwischen 0,5 - 20 MeV⁺

K. Kari

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

⁺ von der Fakultät für Maschinenbau der Universität Karlsruhe
genehmigte Dissertation.

Messung der Spaltquerschnitte von ^{239}Pu und ^{240}Pu relativ zum Spaltquerschnitt von ^{235}U und Streuquerschnitt $\text{H}(n,p)$ in dem Neutronenenergiebereich zwischen 0,5-20 MeV

ZUSAMMENFASSUNG

Mit dem Neutronenflugzeitspektrometer am Karlsruher Isochronzyklotron wurden die Spaltquerschnittsverhältnisse $\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ und $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ im Energiebereich zwischen 0,5 - 20 MeV gemessen. Eine gleichzeitige Messung des Neutronenflusses mit Hilfe eines neuen teleskopartigen Rückstoßprotonenzählers ermöglichte auch die Bestimmung des absoluten Spaltquerschnitts von ^{239}Pu und des relativen Verlaufs des Spaltquerschnitts von ^{240}Pu . Zur Registrierung der Spalt-ereignisse wurde eine verbesserte Gasszintillationszähleranordnung verwendet, die es gestattete, Spalt-ereignisse bei Anwesenheit eines sehr hohen Alpha-Untergrunds bis über 10^6 Ereignisse/sec nachzuweisen.

Die Ergebnisse der Messungen, für die eine stark verbesserte Genauigkeit erreicht wurde, werden in graphischer und tabellarischer Form dargestellt und mit Messungen anderer Autoren verglichen.

Die Anregungsfunktionen der Spaltquerschnitte zwischen 1-20 MeV werden mit Hilfe des direkten Spaltprozesses (n,f) sowie der damit konkurrierenden Spaltkanäle vom Typ (n,n'f) und (n,2nf) interpretiert.

Measurement of the ^{239}Pu and ^{240}Pu Fission Cross-Sections Relative to the ^{235}U Fission Cross-Section and the Scattering Cross-Section $\text{H}(n,p)$ in the Neutron Energy Range from 0.5-20 MeV

ABSTRACT

The fission cross-section ratios $\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ and $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ in the energy range from 0.5-20 MeV were measured by the neutron time-of-flight-spectrometer installed at the Karlsruhe isochronous cyclotron. The simultaneous measurement of the neutron flux by a new telescopic proton recoil counter allowed to determine also the absolute fission cross-section of ^{239}Pu as well as the relative shape of the ^{240}Pu fission

cross-section. An improved gas scintillation counter assembly was used to record the fission events; it allowed to detect fission events in the presence of a very high alpha background of about 10^6 events/s.

The results of the measurements, whose accuracy has been greatly improved, are presented as graphs and tables and compared with measurements made by other authors.

The excitation functions of the fission cross-sections between 1 and 20 MeV are interpreted on the basis of the direct (n,f) fission process and the competing fission channels of the (n,n'f) and (n,2nf) types.

1. EINLEITUNG	1
2. ÜBERBLICK ÜBER MESSMETHODEN UND ZÄHLER	4
2.1 Meßmethoden	4
2.2 Spaltzähler	5
2.2.1 Gasszintillationszähler	6
2.2.2 Ionisationskammern und Gaszähler	7
2.2.3 Halbleiterzähler	9
2.3 Auswahl des Zählertyps	9
3. AUFBAU EINER VERBESSERTEN SPALTKAMMER	11
3.1 Messung der Spezifikationen der Spaltkammer	14
3.1.1 Testimpulsgenerator	14
3.1.2 Einstellung und Überwachung der Verstärkung	15
3.1.3 Bestimmung der elektronischen Nachweis- schwelle	16
3.1.4 Messung der Zeitauflösung	19
3.1.5 Spaltdetektoransprechvermögen	19
3.2 Spaltfolien	22
4. DIE MESSAPPARATUR	25
4.1 Flugzeitspektrometer	25
4.2 Die Flußdetektoren	28
4.2.1 Aufbau und Anordnung der Flußdetektoren	28
4.2.2 Das Ansprechvermögen der Flußdetektoren	31
4.3 Elektronik	39
5. AUSWERTUNG DER MESSERGEBNISSE	41
5.1 Die Neutronenflußbestimmung	41
5.2 Die Energiebestimmung	41
5.3 Bestimmung der Spaltquerschnitte	43
6. KORREKTUREN UND FEHLERABSCHÄTZUNG	45
6.1 Korrekturen	45
6.1.1 Isotopenkorrektur	45
6.1.2 Die Anisotropiekorrekturen	45
6.1.3 Streukorrekturen	46
6.1.4 Untergrundkorrekturen	47
6.1.5 Totzeitkorrekturen	47
6.2 Gesamtfehler der Spaltquerschnittsverhältnisse	49
6.3 Gesamtfehler der absoluten Spaltquerschnitte	49

	Seite
7. DARSTELLUNG DER MESSERGEBNISSE	52
8. DISKUSSION	68
8.1 Vergleich der Messung mit Ergebnissen anderer Laboratorien	68
8.1.1 Das Verhältnis $\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$	68
8.1.2 Der absolute Spaltquerschnitt von ^{239}Pu	74
8.1.3 Das Verhältnis $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$	78
8.1.4 Der absolute Spaltquerschnitt von ^{240}Pu	80
8.2 Interpretation der Spaltquerschnitte	83
 LITERATURVERZEICHNIS	 87

1. EINLEITUNG

Natürliches Uran besteht zu 99,3 % aus ^{238}U . Dieses ist mit langsamen Neutronen nicht spaltbar. Es scheidet deshalb für die Verwendung als Brennstoff in thermischen Reaktoren aus. In Reaktoren dieses Typs kann deshalb nur ein ganz geringer Bruchteil des Natururans, nämlich das nur zu 0,7 % enthaltene ^{235}U abgebrannt werden. Setzt man jedoch ^{238}U einem Beschuß mit Neutronen aus, so läßt sich das ^{238}U über Neutroneneinfang mit zweifachem β -Zerfall in den thermisch spaltbaren starken Kernbrennstoff ^{239}Pu überführen und damit eine erheblich verbesserte Ausnutzung des Natururans zur Energieerzeugung erreichen /1/. Diese Überlegung bildet die Grundlage für das Konzept eines schnellen Brutreaktors. Das Prinzip dieses Reaktortyps in vereinfachter Darstellung beruht darauf, daß der Reaktorkern, in welchem sich ^{239}Pu als Brennstoff befindet, mit einem Mantel aus ^{238}U umgeben wird. Die im Core frei werdenden Spaltneutronen tragen nun einerseits zur Aufrechterhaltung der Kettenreaktion im Reaktor bei, bilden andererseits durch Einfang im ^{238}U den starken Kernbrennstoff ^{239}Pu . Einen Bruteffekt erreicht man dann, wenn mehr neues ^{239}Pu im ^{238}U -Mantel erzeugt wird, als im Reaktorcore beim Betrieb des Reaktors verbrennt. Dies bedeutet, daß nach einem Spaltprozeß im Mittel eines der freiwerdenden Spaltneutronen eine weitere Spaltung, aber auch mindestens ein weiteres einen Brutprozeß auslöst.

Das Konzept eines Brutreaktors, und weiterhin die optimale Auslegung, hängen in erster Linie von den neutronenphysikalischen Eigenschaften des Brennstoffs ab. Die wichtigsten Größen in diesem Zusammenhang sind der Spaltquerschnitt σ_f , der Absorptionsquerschnitt σ_a , der Einfangquerschnitt σ_n sowie $\bar{\nu}$, die mittlere Zahl der pro Spaltung emittierten Neutronen. In der Praxis kann man aber im Core kein reines ^{239}Pu verwenden, da durch sukzessiven Neutroneneinfang aus ^{239}Pu schwerere Plutoniumisotope, vor allem ^{240}Pu und ^{241}Pu , entstehen. Daher ist eine genaue Kenntnis der Neutronendaten, auch der anderen Pu-Isotope von Bedeutung.

Die genaue neutronenphysikalische Untersuchung eines Brutreaktors mit ^{239}Pu als Brennstoff zeigt, daß er mit möglichst schnellen Neutronen betrieben werden muß. Dies liegt in erster Linie daran, daß die mittlere Zahl der Spaltneutronen mit der Energie des einfallenden Neutrons steigt. Daher spielen

die Spaltquerschnitte über die gesamten Bereiche des Spaltspektrums, d.h. bis in den MeV-Bereich hinein, eine wichtige Rolle. Dabei liegt das Schwerk-
gewicht zwar auf ^{239}Pu und ^{238}U , aber auch ^{240}Pu ist in diesem Zusammenhang
nicht zu vernachlässigen, wenn man bedenkt, daß dieses Isotop im mehrfach
rezyklierten Brennstoff bis auf 20 % angereichert werden kann /2/.

Aus der Tatsache, daß sich die Unsicherheiten des Spaltquerschnitts von ^{239}Pu
praktisch direkt auf die Kritikalitätsbedingung auswirken, ergibt sich die
herausragende Bedeutung dieser Größe. Die Bedeutung, die einer genauen
Kenntnis der Spaltquerschnitte von ^{239}Pu und ^{240}Pu zukommt, drückt sich in
den sogenannten "request lists"/3,4/ aus, in denen die Anforderungen an die
Genauigkeit von Wirkungsquerschnitten zusammengestellt sind. In diesem wird
für ^{239}Pu eine Genauigkeit von 3 % über den gesamten Bereich von 1 keV - 10 MeV
gefordert. Eine etwas reduzierte Anforderung an die Genauigkeit besteht für
 ^{240}Pu . Trotzdem beträgt diese ebenfalls noch 5 % unterhalb von 5 MeV und
10 % oberhalb dieses Werts.

Während der Spaltquerschnitt von ^{239}Pu unterhalb von 0,5 MeV in den
vergangenen Jahren größtenteils mit befriedigender Genauigkeit gemessen wurde,
gab es im hohen keV-Bereich sowie im MeV-Gebiet bisher nur sehr ungenaue
bzw. diskrepante Messungen. Die zwischen 1-20 MeV vorliegende Messung, die
zum überwiegenden Teil Spaltquerschnittsverhältnismessungen relativ zu
 ^{235}U darstellen, sind einerseits bezüglich des Energiebereichs äußerst lücken-
haft und, wo mehrfach untersucht, stark diskrepant (siehe Abschnitt 8).
Im Energiebereich zwischen 8-14 MeV fehlten Messungen bisher ganz.
Noch unbefriedigend ist die Situation für ^{240}Pu , wo nur wenig Absolutmessungen
in kleinen Energiebereichen vorlagen, so daß sich die bisherigen Kenntnisse
z.T. noch auf Berechnungen dieser Größe stützen. Das Fehlen von Messungen
an diesem Kern ist in erster Linie auf die experimentellen Schwierigkeiten
zurückzuführen, die sich aus der hohen Alpha-Aktivität ergeben. Dies führt
wegen der Halbwertszeit von 6537 J zu erheblichen Problemen aufgrund des
hohen Alpha-Pile-ups, der die Diskriminierung zwischen Spaltereignissen und
Alpha-Zerfällen erschwert. Eine erste Messung über einen größeren zusammenhän-
genden Energiebereich gab es dann auch erst in den letzten zwei Jahren während
der Laufzeit der Messungen dieser Arbeit. Bei der Messung, die im Lawrence
Livermore Laboratorium /7/ durchgeführt wurde, handelte es sich jedoch nur
um eine Spaltquerschnittsverhältnismessung relativ zu ^{235}U .

Ziel dieser Arbeit war es deswegen, die Wirkungsquerschnitte für die beiden wichtigsten Pu-Isotope im oberen Bereich des Spektrums eines Brutreaktors neu bzw. mit verbesserter Genauigkeit zu bestimmen. Die Rechtfertigung für ein derartiges, neues Meßvorhaben lieferten, wie bereits angedeutet, mehrere Gründe. Die bisherigen, oberhalb von 0,5 MeV gemessenen Spaltquerschnitte, waren zum Teil unvollständig, und zwischen den Ergebnissen verschiedener Laboratorien traten Diskrepanzen bis zu 15 % auf, die z.T. weit außerhalb der angegebenen Fehlergrenzen lagen. Darüberhinaus konnte in keiner der bisherigen Messungen die von den Reaktorphysikern angestrebte Genauigkeit von 3-5 % erreicht werden. Dies sollte mit einer verbesserten Apparatur geschehen, mit der die früheren Schwierigkeiten, die sich aus der hohen Alpha-Aktivität ergaben, überwunden werden konnten. Für beide Isotope sollten außerdem sowohl die absoluten Spaltquerschnitte selbst (unter Verwendung der H(n,p)-Reaktion als Standard) als auch die Spaltquerschnittsverhältnisse relativ zu ^{235}U gemessen werden. Auf diese Weise bestand die Möglichkeit, neben einer Neubestimmung der Absolutgrößen auch die Beziehung zu der größeren Zahl früherer Messungen der Spaltquerschnittsverhältnisse herzustellen. Zur Absolutmessung sollte schließlich versucht werden, den Neutronenfluß mit einer neuen, unabhängigen Methode mit einer Genauigkeit von 2-3 % zu messen.

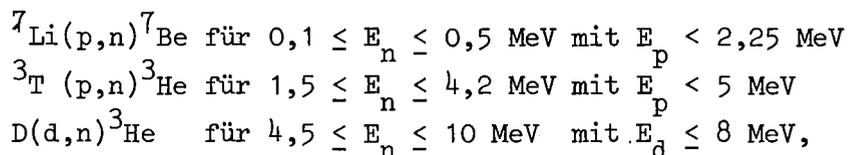
2. ÜBERBLICK ÜBER MESSMETHODEN UND ZÄHLER

2.1 Meßmethoden

Zur Messung der Energieabhängigkeit der Spaltquerschnitte im hier interessierenden Energiebereich von einigen 100 keV bis 10 MeV werden im wesentlichen zwei Methoden verwendet, die entsprechend den Typen der eingesetzten Neutronenquellen eingeteilt werden können.

- I. Die punktweise Messung der Wirkungsquerschnitte mit monoenergetischen Neutronen aus Reaktionen mit geladenen Teilchen an leichten Kernen (z.B. ${}^7\text{Li}(p,n)$, $\text{T}(p,n)$ usw.).
- II. Die gleichzeitige Messung der Wirkungsquerschnitte über einen breiten Energiebereich mit Quellen, die ein kontinuierliches Neutronenspektrum liefern. Diese Quellen erfordern Mittelenergiebeschleuniger von Elektronen, Deuteronen oder Protonen.

Die wichtigsten Beschleuniger, an denen die erste Methode verwendet wird, Van-de-Graaff und Kaskaden-Beschleuniger. Monoenergetische Neutronen im Bereich zwischen 1 keV - 10 MeV können mit den o.g. Beschleunigern über die nachfolgend genannten Reaktionen erzeugt werden:



wobei die Projektilenergien sich auf die Neutronenemission in Vorwärtsrichtung beziehen. Natürlich können diese Reaktionen auch noch oberhalb der angegebenen Grenzen ausgenutzt werden, dann setzen jedoch Schwierigkeiten wegen folgender Effekte ein:

- 1.) dem Auftreten einer zweiten Neutronengruppe bei der ${}^7\text{Li}(p,n)$ -Reaktion oberhalb von $E_p = 2,25 \text{ MeV}$,
- 2.) dem wachsenden Auftreten von Aufbruchprozessen, die Neutronen mit einem kontinuierlichen Energiespektrum liefern.

Ein wesentlicher Vorteil der Methode der monoenergetischen Messungen besteht darin, daß unter zusätzlicher Ausnutzung der Flugzeitmethode parisisärer

Untergrund vor allem infolge von Streueffekten in der Umgebung vermieden werden kann. Nachteilig ist dagegen, daß die derzeit für gepulste Experimente mit elektrostatischen Beschleunigern erreichbaren Ströme relativ klein sind, so daß vielfach in geringen Abständen von der Quelle gemessen werden muß. Dadurch kommen die obigen Vorteile nur zum Teil zum Tragen, weil sich auf diese Weise oft größere Materialmengen in unmittelbarer Nähe der Zähler konzentrieren.

In den letzten Jahren wurde der weitaus größte Teil der Informationen mit Hilfe der zweiten Methode, d.h. über Messungen mit kontinuierlichen Neutronenquellen gewonnen. Diese liefern z.Zt. integrale Neutronenintensitäten, die um 4 bis 6 Größenordnungen höher sind als die monoenergetischen Quellen. Bei diesen Experimenten muß aber zur Energiebestimmung der einfallenden Neutronen stets die Flugzeitmethode verwendet werden. Sie kann dann im allgemeinen nicht mehr zusätzlich zur Unterdrückung von Störeffekten ausgenutzt werden. Da aber zur Erzielung einer guten Energieauflösung ohnehin lange Flugwege verwendet werden müssen, kann hier z.B. durch geeignete Kollimierung eine Reduzierung der verschiedenen Störeffekte erfolgen. Ein wesentlicher Vorteil bei den Messungen mit kontinuierlichen Quellen besteht auch darin, daß ein großer Bruchteil des gesamten für die Reaktorphysik interessierenden Energiebereichs gleichzeitig und unter identischen Bedingungen gemessen werden kann. Im Falle des Neutronenflugzeitspektrometers am Karlsruhe, Zyklotron reicht der Meßbereich von einigen 100 keV bis zu mehr als 30 MeV. Das Karlsruher Spektrometer ist außerdem eine der wenigen Anlagen in der Welt, mit denen z.Zt. präzise Messungen oberhalb von etwa 5 MeV überhaupt ausgeführt werden können.

2.2 Spaltzähler

Zur Messung von Spaltereignissen läßt sich prinzipiell eine große Zahl von Zählern mit unterschiedlichen Spezifikationen verwenden, auf die alle hier jedoch nicht eingegangen werden kann. Stattdessen soll in diesem Rahmen nur eine allgemeine Beschreibung der wichtigsten Typen und ihrer wichtigsten Eigenschaften gegeben werden. Dabei wird vorausgesetzt, daß moderne Spaltzähler unter Ausnutzung der Flugzeitmethode einsetzbar sein müssen, da, wie oben gezeigt wurde, beide Meßverfahren diese anwenden.

Ein für Präzisionsmessungen geeigneter Spaltzähler muß vor allem folgende Eigenschaften besitzen:

1. gute Möglichkeit zur Trennung von Alphateilchen und Spaltfragmenten,
2. hohe Ansprechwahrscheinlichkeit
3. gute Zeitcharakteristik (entweder zur Erzielung einer guten Energieauflösung oder zur Unterdrückung von Störeffekten (z.B. Spaltung durch gestreute Neutronen oder Spontanspaltung),
4. Unempfindlichkeit gegenüber Neutronen- und Gammastrahlung ,
5. Unempfindlichkeit gegenüber Strahlungsschäden.

In der folgenden Beschreibung soll deshalb vor allem auch darauf eingegangen werden, inwieweit die geforderten Voraussetzungen bei den betrachteten Zählertypen erfüllt sind.

Die drei wichtigsten Zählertypen, die z.Zt. bei differentiellen Spaltquerschnittsmessungen eingesetzt werden, sind Gasszintillatoren, Ionisationskammern, Gaszähler und Halbleiterzähler.

2.2.1 Gasszintillationszähler

Gasszintillationszähler nutzen die Szintillationseigenschaften von Edelgasen aus. Verwendung finden u.a. Zähler mit He, Ar, Kr und Xe-Füllung, wobei Zähler mit Ar- und Xe-Füllung z.Zt. am weitesten verbreitet sind. Gasszintillatoren sind sehr schnell. Die Abklingzeit von Szintillationsvorgängen im Zählgas liegen bei einer bis einigen nsec. In Verbindung mit schnellen Photomultipliern, die kleine Laufzeitstreuungen (<1 nsec) besitzen, lassen sich mit diesen Zählern totale Zeitaufösungen von etwa 1-2 nsec erreichen. Bei diesen Szintillatoren erfolgt die Photonenemission aus der durch die Strahlungswechselwirkung angeregte Elektronenhülle des Edelgases im allgemeinen im Ultraviolettbereich, so daß zum Teil Phasenschieber (z.B. Zusatz von 15 % N_2 zu Ar), darüberhinaus aber meistens aus UV-empfindliche Photomultiplier eingesetzt werden müssen.

Eine wichtige Eigenschaft der Edelgasszintillatoren ist auch, daß die Lichtausbeute eine lineare Funktion der im Gasvolumen absorbierten Energie ist (mit Ausnahme des niedrigsten Energiebereichs unterhalb von ca. 100 keV). Die Lichtausbeute für eine bestimmte Energie ist auch unabhängig von der Teilchenart. Dies erleichtert eine genaue Energieeichung der Zähler, z.B. durch gleichzeitige Eichung mit Alphateilchen und Spaltprodukten aus der Spontanspaltung desselben Präparats.

Szintillationszähler lassen sich mit hoher Ansprechwahrscheinlichkeit konzipieren. Mit dünnen Spaltfolien und genügend großen Spaltkammern sind Ansprechwahrscheinlichkeiten von nahezu 100 % zu erreichen. Gasszintillatoren sind in hohem Grade unempfindlich gegenüber Strahlenschäden. Bereits bei Verwendung von kleinen Schwellenenergien (5-10 MeV) sind sie außerdem praktisch unempfindlich gegenüber Neutronen- und Gammastrahlung.

2.2.2 Ionisationskammern und Gaszähler

Das Prinzip der Ionisationskammern besteht darin, daß die geladenen Primärteilchen beim Durchlaufen des Zählgases durch Ionisation eine große Zahl von Ladungsträgerpaaren erzeugen. Diese werden dann durch Anlegen eines elektrischen Feldes an den Elektroden gesammelt, wo sie einen entsprechenden Stromimpuls, dessen Anstiegszeit von der Betriebsspannung, dem Abstand zwischen den Elektroden und dem Gasdruck bzw. der Gasart abhängt, liefern. Derzeitig für Spaltnmessungen verwendete Kammern bestehen meistens aus parallelen Elektroden, häufig mit einer Vielzahl von hintereinander geschalteten Einzelkammern /8,9/.

Während bei Ionisationskammern Impulsanstiegszeiten von 10^{-7} sec typisch sind, lassen sich mit Parallelplattenzähler, die im Funkenbereich betrieben werden, Impulsaufbauzeiten in der Größenordnung von 1 nsec erreichen. Dabei führt eine Verringerung des Plattenabstands besonders bei Ionisationskammern zur Verringerung der entsprechenden Anstiegszeit. Bei geringem Abstand der Platten kommt es aber auch auf hohe Homogenität des Abstandes über die gesamte Fläche der Platten an, da der Zähler andernfalls starke, ortsabhängige Effekte aufweist. Diese letzte Forderung führt dazu, daß die Zählerplatten die gleichzeitig als Trägerfolie für das Trägermaterial dienen, relativ dick sein müssen, um Inhomogenitäten aufgrund von Verformungen zu vermeiden. Damit wird gleichzeitig sehr viel zusätzliches Material in den Neutronenstrahl gebracht, so daß hohe Streueffekte am Zählerplattenmaterial auftreten, welche große Korrekturen in den Wirkungsquerschnittsmessungen erfordern.

Für den Einsatz bei Experimenten mit hohem Alphauntergrund läßt sich bei Gaszählern im Prinzip folgender Effekt günstig ausnutzen; Neben ihrer stark unterschiedlichen kinetischen Energie unterscheiden sich Alphateilchen und Spaltfragmente auch aufgrund ihrer spezifischen Ionisation in Materie. Während die Spaltfragmente in der ersten Phase ihrer Abbremsung sehr hohe spezifische Ionisation aufweisen, beginnen Alphateilchen zunächst mit niedrigen spezifischen Energieverlusten dE/dx . Dieser Effekt kommt bei Ionisationskammern positiv zum Tragen, wenn die Plattenabstände klein gegen die Reichweite der Alphateilchen sind. Er läßt sich jedoch nicht optimal bei Parallelplattenzählern ausnutzen, weil bei verschiedenen Emissionswinkeln große Laufwegunterschiede auftreten, welche den Effekt wieder weitgehend aufheben. Diese Überlegung hat zu einer Neuentwicklung eines Gaszählers geführt, den Dabbs et al. /10/ kürzlich für Spaltermessungen an hoch-alpha-aktiven Materialien (^{241}Am , Halbwertszeit 30 a) aufgebaut haben. Um die Flugwegdifferenzen für alle vorkommenden Emissionswinkel auf ein Minimum zu reduzieren, entwickelten sie einen Gaszähler mit kugelförmigen Elektroden. Der kugelförmige Aufbau garantiert nicht nur geringe Flugwegdifferenzen, sondern führt auch zu einem stark inhomogenen Feld zwischen den Elektroden. Da der Zähler als Ionisationskammer bei hohem Druck betrieben wird, ist er unempfindlich gegen Änderungen des Elektrodenabstands und der Zählerspannung. Eine Weiterentwicklung dieses Zählertyps stellt die Entwicklung von Käppeler und Kazerouni /12/ dar. Diese haben eine geometrisch ähnliche Kammer aufgebaut, die bei einem Druck von nur wenigen mbar als Lawinenzähler arbeitet. Ihr Zähler ist mit Butan als Quenching-Gas gefüllt, um die langsame Ionenkomponente des Signals zu unterdrücken. Der Quenchingeffekt ermöglicht bei diesem System gleichzeitig die Unterdrückung der durch Alphateilchen ausgelösten Ionisation, während die Spaltprodukte noch ein Ausgangssignal liefern. Da das Zählgas wegen des hohen Strahlungspegels dissoziiert, muß das Gas im ständigen Durchfluß fortlaufend erneuert werden. Gleichzeitig ist eine Gasdruckstabilisierung notwendig, da die oben geschilderten Rekombinationsprozesse entscheidend vom Gasdruck und der Zählerspannung abhängen. Der Zähler, der z.Zt. noch in der Enderprobung ist, ermöglicht aufgrund erster Tests eine Alpha-Unterdrückung von besser als 10^{-10} . Sein Einsatz ist vor allem für Messungen an Kernen mit Alpha-Halbwertszeiten von kleiner als 30 Jahren von Vorteil.

2.2.3 Halbleiterzähler

Halbleiterzähler werden in der Hauptsache bei Spaltnmessungen eingesetzt, die detaillierte Untersuchungen der Dynamik des Spaltprozesses zum Ziel haben. Damit sind z.B. Untersuchungen der Energie- und/oder Massenverteilungen der Spaltfragmente sowie der massenabhängigen Zahl der Spaltneutronen gemeint. Damit das empfindliche Volumen direkt an der Oberfläche des Detektorkristalls beginnt, müssen bei Spaltexperimenten Oberflächensperrschichtzähler verwendet werden. Hier sind vor allem Si-Oberflächensperrschichtzähler von Vorteil, die speziell als Spaltzähler wegen der hohen Energieverluste der Spaltfragmente eine sehr dünne tote Zone, z.B. eine extra dünne Goldschicht, besitzen müssen.

Wegen der kurzen Reichweite der Spaltprodukte werden Zähler von typischerweise 60 μ Dicke verwendet, die heute kommerziell sehr großflächig geliefert werden (bis zu ~ 10 cm²). Mit diesen Zählern lassen sich Zeitauflösungen unter 200 psec realisieren. Gleichzeitig liefern sie Energieauflösungen in der Größenordnung von ca. 1 %.

Ein entscheidender Nachteil dieser Zähler ist ihre hohe Empfindlichkeit in Bezug auf Strahlenschäden. Die tolerierbare Dosis wird mit 10^{12} - 10^{14} Teilchen angegeben. Damit wird sein Einsatz bei Messungen an hochaktiven Materialien von vornherein ausgeschlossen. Der Zähler spricht außerdem auf Neutronen an, die durch Kernreaktionen im Zählermaterial die Emission geladener Teilchen verursachen. Weiterhin ist bei Messungen mit großflächigen Spaltfolien von mehreren 10 cm², wie sie heute bei Spaltquerschnittsmessungen mit Neutronen erforderlich sind, nur eine kleine totale Ansprechwahrscheinlichkeit zu erreichen. Dies liegt daran, daß mit den entsprechenden kleineren Zählerflächen nur ein kleiner Bruchteil des Gesamtwinkels erfaßt werden kann.

2.3 Auswahl des Zählertyps

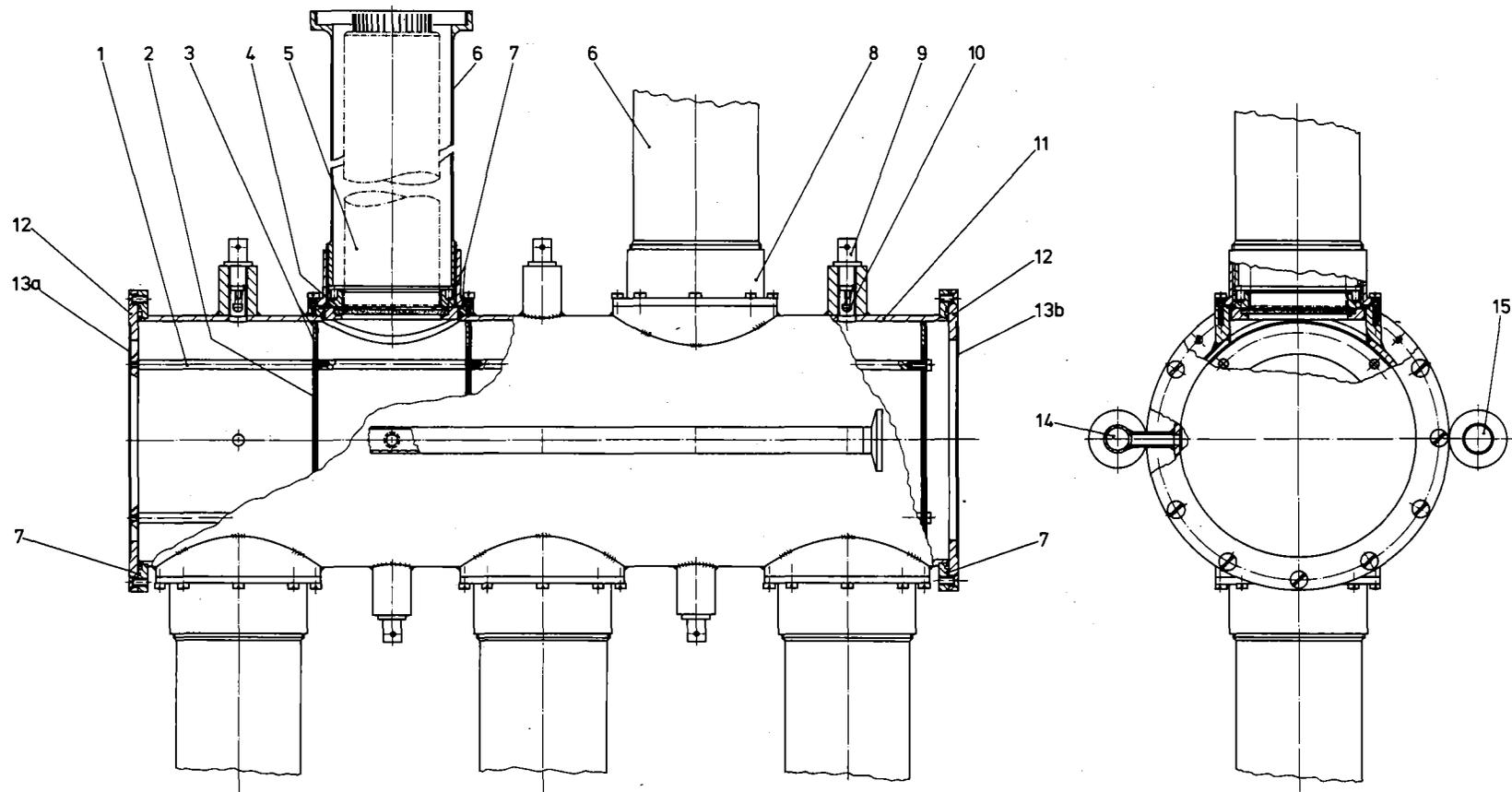
Aus der vorangegangenen Darstellung geht hervor, daß eine Verwendung von Halbleiterzählern bei statistisch genauen Messungen der Spaltquerschnitte von ²³⁹Pu und ²⁴⁰Pu vor allem wegen der starken Strahlenempfindlichkeit, aber auch wegen der insgesamt erreichbaren kleinen totalen

Ansprechwahrscheinlichkeit ausscheidet. Ebenso erscheint der Einsatz von üblichen Ionisationskammern mit parallelen Elektroden bei Absolutmessungen unzweckmäßig, weil die hohen Streueffekte hier unannehmbar große Korrekturen erfordern würden. Der Einsatz von Spezialkammern wie den Ionisationskammern mit sphärischem Aufbau oder den entsprechend als Lwinenzählern weiterentwickelten Detektoren erschienen für den vorgesehenen Fall noch nicht genügend gerechtfertigt. Die Alpha-Halbwertszeiten der beiden Pu-Isotope liegen mit $2,44 \times 10^4$ y und $6,54 \times 10^3$ y noch in einem Übergangsbereich, bei dem zwar schon Probleme beim Einsatz von konventionellen Gasszintillatoren auftreten, eine extrem hohe Unterdrückung, wie sie mit den Lawinendetektoren erreicht wird, jedoch noch nicht erforderlich ist. Es erschien deshalb zweckmäßig, die aus früheren Messungen an Uranisotopen vorhandene Gasszintillatoranordnung durch Optimierung aller Parameter so zu verbessern, daß die Spaltquerschnitte auch noch bei Alphauntergrundzählraten von einigen 10^6 sec^{-1} weitgehend störungsfrei gemessen werden konnten.

3. AUFBAU EINER VERBESSERTEN SPALTKAMMER

Aufgrund der im vorigen Abschnitt gemachten Überlegungen erschien die Verwendung eines Gasszintillationszählers am zweckmäßigsten. Seine Anwendung zum Nachweis von Spaltfragmenten wurde in vielen Arbeiten beschrieben /13,14/.

Abb. 1 zeigt die geometrische Anordnung der hier verwendeten Spaltkammer. Sie besteht aus acht aneinandergereihten, durch vier Plutonium- und drei Uranfolien getrennten Teilkammern. Jeder Abschnitt wird durch ein für Ultraviolettstrahlung durchlässiges Quarzfenster von je einem Photomultiplier, Type VALVO DUV-56 beobachtet. Als Szintillatorgas wurde ein Gemisch aus 85 % (Vol.) Argon und 15 % (Vol.) Stickstoff verwendet. Stickstoff, dessen Hauptlumineszenzlinie bei 3900 \AA liegt, dient hierbei als Frequenzwandler der Argonszintillationen, deren Wellenlänge bei 2200 \AA /15/ weit außerhalb des Empfindlichkeitsbereiches der verwendeten Photomultiplier liegt /16/. Um Verunreinigungen durch Sauerstoff zu vermeiden (weil Sauerstoff die Lichtausbeute wegen seiner elektronegativen Eigenschaften vermindert), wurde das Gas im stetigen Strom mit einem geringen Überdruck durch die Kammer geleitet. Das Ar-N₂-Gemisch wurde wegen seiner relativ hohen Lichtausbeute und spezifischen Ionisation bevorzugt. Das letztere führt zu einer kleinen mittleren Reichweite der Spaltprodukte, die bei ca. 2,5 cm für das leichte und ca. 2 cm für das schwere Fragment liegen /17/. Beim Einbau der Spaltfolie in die Kammer wurde der Abstand zwischen je zwei Kammern so gewählt, daß die Spaltfragmente ihre volle kinetische Energie in der Kammer abgeben können. Im Helium als Zählgas dagegen wäre die mittlere Reichweite wegen der kleinen Ordnungszahl und damit spezifischen Ionisation sehr groß. Sie beträgt ca. 15 cm /18/. Das Xenon, welches noch bessere Lichtausbeute als das Ar-N₂-Gemisch besitzt, wird im Laufe der Zeit durch Spuren von Fremdgas vergiftet. Daher wird die Anwendung dieses Gases wegen der ständig notwendigen Reinigung in geschlossenem Kreislauf zu kompliziert und gleichzeitig zu kostspielig. Die inneren Wände der Kammer wurden mit Silber als Reflektor bedampft. Findet in einer Folie ein Spaltereignis statt, so fliegen die beiden Fragmente in entgegengesetzter Richtung auseinander und erreichen je einen der Folie benachbarten Abschnitt des Zählers. Die Szintillation liefert dann je-



- | | | |
|-------------------------------|------------------------|-------------------------------------|
| 1 = Distanzbolzen | 7 = Indium-Dichtung | 13a = Eintrittsfenster (0,1mm dick) |
| 2 = Spaltfolie | 8 = Gewindebuchse | 13b = Austrittsfenster (0,1mm dick) |
| 3 = Folienhalterungsringe | 9 = BNC-Buchse | 14 = Gaseinlaß |
| 4 = Quarzfenster (Spectrosil) | 10 = Luminiszenz-Diode | 15 = Gasauslaß |
| 5 = Fotovervielfacher | 11 = Gehäuse | |
| 6 = Hülse | 12 = Flansch | |

Abb. 1. Seitenansicht und Schnitt durch die Spaltdetektoranordnung

weils einen Impuls am Ausgang des Photomultipliers.

Ein Zweifach-Koinzidenzsignal wird dann als Spaltereignis der dazwischenliegenden Folie ausgewertet, wenn jedes der beiden Fragmente mindestens eine Energie von ca. 22 MeV in der Kammer abgibt (Spaltdetektor-Nachweisschwelle) und beide Impuls innerhalb einer Koinzidenzzeit von 30 nsec registriert werden. Durch diese Koinzidenzschaltung und die passende Einstellung der Spaltdetektor-Nachweisschwelle wurden sowohl der hohe α -Untergrund diskriminiert als auch die Rauschimpulse unterdrückt. Eine Koinzidenz zwischen je zwei benachbarten Spaltdetektoren setzt eine optische Trennung zwischen benachbarten Abschnitten des Spaltdetektors voraus. Diese Bedingung wurde durch einen geeigneten Einbau der Spaltfolien in der Kammer erfüllt, deren Al-Auflage auf der Vyns-Trägerfolie als optische Trennwand dient. Uran- und Plutoniumfolien wurden unmittelbar hintereinander angeordnet und dadurch praktisch dem gleichen Neutronenfluß ausgesetzt. Diese Anordnung ermöglichte eine genaue Bestimmung der Spaltquerschnittsverhältnisse, bei denen eine Neutronenflußbestimmung entfällt. Die Abschwächung des Neutronenflusses durch die dünnen Spaltfolien war vernachlässigbar klein. Eine geringe Flußabnahme von Folie zu Folie ergab sich nur aufgrund der unterschiedlichen Abstände von der Neutronenquelle.

Bei der Anwendung dieser Anordnung für die Spaltquerschnittsmessung von Plutoniumisotopen muß man wegen der hohen α -Zählrate mit hoher Strombelastung der Photomultiplier rechnen. Diese kann im Prinzip die Multiplierstabilität gefährden. Daher mußten die Betriebsspannung U_B und damit die Verstärkung so klein eingestellt werden ($U_B \approx 1750$ V), daß der Strom im Multiplier den maximalen zulässigen Wert des Anodenstromes $I_{A \max}$ (200 μ A) nicht überschreitet. Zusätzlich mußte der Querstrom im Spannungsteiler bei der eingestellten Betriebsspannung groß gegenüber dem mittleren Anodenstrom gehalten werden. Diese Bedingung wurde durch geeignete Dimensionierung der Spannungsteilerwiderstände erfüllt. Durch den Wechsel der Kathodenbeleuchtung aufgrund der α -Zählrate ändern sich die Dynodenströme sehr schnell. Dieses führt zu Potentialänderungen an den Spannungsteilerwiderständen, die eine

Verstärkungsschwankung des Multipliers zur Folge hätten. Um das zu vermeiden, wurden die Widerstände der letzten Stufen des Spannungsteilers mit großen Kapazitäten (5nF) abgeblockt. Dadurch werden störende Potential- und somit Verstärkungsschwankungen weitgehend vermieden. Zur Einstellung und Überwachung der Verstärkung wurde ein neuer schneller Testgenerator gebaut.

3.1 Messung der Spezifikationen der Spaltkammer

3.1.1 Testimpuls-Generator

Als künstliche Lichtquelle wurden zur Stabilitätsüberwachung der Photomultiplier Lumineszenzdioden der Type MV 35 von Monsanto, deren Wellenlängen im sichtbaren Bereich liegen, verwendet. Diese waren auf der gegenüberliegenden Seite jedes Photomultipliers in den jeweiligen Spaltkammern montiert: Steuert man diese Diode mit sehr kurzen Impulsen an, so emittiert sie Lichtblitze, deren Impulshöhe der Multipliierverstärkung proportional ist. Diese Lumineszenzeigenschaften wurden ausgenutzt, um die Multipliierverstärkung zu überwachen. Für die Ansteuerung der Dioden mit kurzen Impulsen (ca. 2 nsec Anstiegszeit und 12 nsec Halbwertsbreite) wurde ein stabiler Impulsgenerator gebaut /19/. Die Abb. 2 zeigt den elektronischen Aufbau.

Mit Hilfe eines Quecksilberrelais Typ (HGRM 55211 Ko) nimmt ein BNC-Kabel der Länge L von einer Gleichspannungsquelle U die Ladung Q auf und gibt diese an die Lumineszenzdiode zur Ansteuerung ab. Die Ladungsmenge Q ist der Spannung U und der Kabellänge L proportional. Die Breite des Ausgangsimpulses ist gleich der doppelten Laufzeit der elektrischen Welle im Kabel.

Für die Betätigung des Quecksilberrelais ist ein Oszillator gebaut worden (Abb. 2). Verbindet man den Ausgang des Bausteins SN 74123 mit seinem Eingang, so erhält man einen vielseitig verwendbaren Oszillator. Frequenzbestimmend sind der Widerstand R1 (5-50 k Ω) und der Kondensator C1 (100 pF - 1000 μ F). Der Frequenzbereich reicht von einigen Zehntel Hz bis 5 MHz. Am Ausgang des Oszillators stehen jeweils ein positiver und ein negativer Impuls mit einer Halbwertsbreite von ca. 20 nsec zur Verfügung. Dieses Signal wird anschließend auf ein monostabiles Flip-Flop

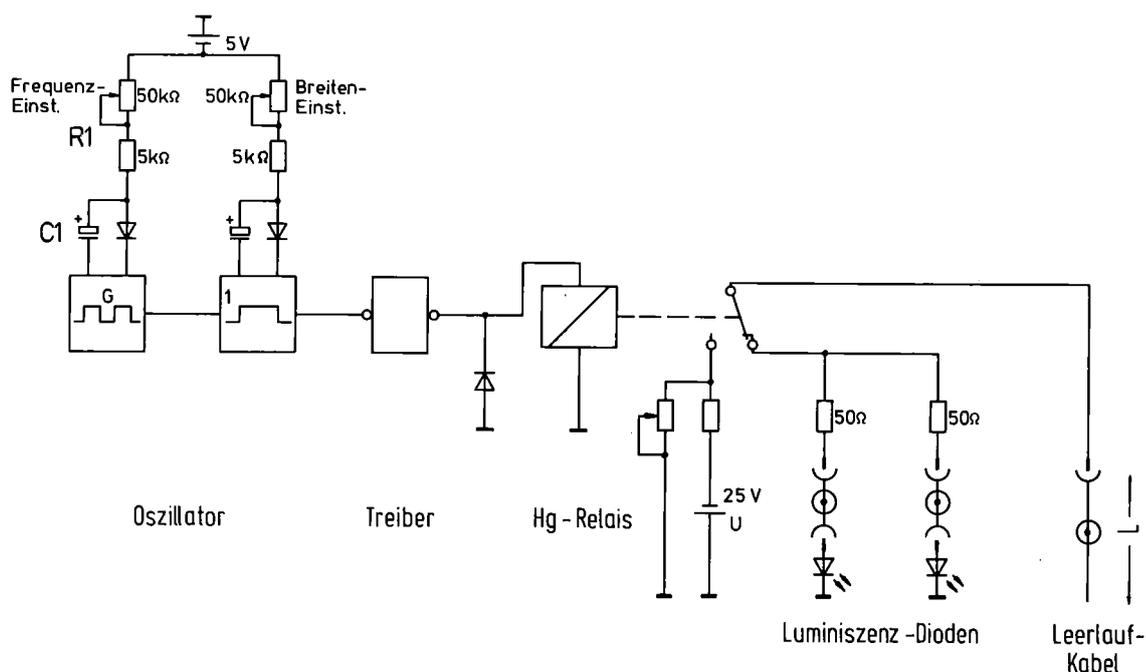


Abb. 2 Schaltbild des Test-Impulsgenerators. Der Generator wurde im Rahmen dieser Arbeit zum Zwecke der Überwachung der Spaltdetektorstabilität entwickelt.

übertragen, mit dem die für die nachfolgende Oszillatorschaltung günstigste Impulsbreite erzeugt wird. Die nötige Leistung für das Relais wurde durch einen Treiber geliefert. Die Schaltfrequenz des Relais wurde zu ca. 160 Hz gewählt, da höhere Frequenzen aus mechanischen Gründen nicht erlaubt sind. Die Ansteuerimpulsbreite des Relais lag bei $1/320$ sec.

3.1.2 Einstellung und Überwachung der Verstärkung

Eine genaue Bestimmung der Nachweisschwelle der Spaltdetektoren setzt deren Verstärkungsstabilität während der ganzen Messung voraus. Die Übereinstimmung der Schwellen verschiedener Spaltkammern fordern die gleichen Verstärkungen der Photomultiplier bei entsprechender Einstellung der Diskriminatorschwellen.

Wegen der hohen Radiotoxizität des Plutoniums und der Erschütterungsempfindlichkeit der dünnen Spaltfolien war es zweckmäßig, die Kammern nach Einbau der Folien nicht mehr zu öffnen. Daher mußten alle Eichmessungen

vor dem Folieneinbau durchgeführt werden. Danach galt es nur noch, die Konstanz der einmal vorgenommenen Einstellung zu kontrollieren.

Der Abgleich auf gleiche Verstärkung der Kammern wurde mit Hilfe einer ^{252}Cf -Quelle durchgeführt, mit der die beiden Spaltfragmente aufgelöst werden konnten. Dabei wurde berücksichtigt, daß die Spaltdetektorbelastbarkeit wegen des α -Untergrundes bei dieser Verstärkung den maximal zulässigen Anodenstrom nicht überschreiten durfte (vgl. Abschnitt 3). Trotzdem könnten solche Belastungen mehr oder weniger zur Verstärkungsänderung und damit zur Verschmierung der elektronischen Nachweisschwelle führen. Dies machte eine Überwachung der Verstärkung notwendig. Um das zu erreichen, wurde vor Einbau der Folien eine Eichkurve zur Überwachung der Verstärkung, wie Abb. 4c zeigt, gemessen. Dies erlaubte es, die Verstärkung zu jeder Zeit während der Messung zu überprüfen. Abb. 3 zeigt die Meßapparatur (Schalter in Einstellung 2). Die Verwendung des Gatesignals am Stretcher ermöglicht die Messung des Diodensignals ($F \sim 160 \text{ Hz}$) in Anwesenheit des hohen α -Untergrundes ($\sim 10^7 \text{ Hz}$).

Geht nun die Verstärkung irgendeines Detektors zurück, so sollte dies nicht durch die Änderung der Betriebshochspannung des Detektors ausgeglichen werden, da dies einen erhöhten Anodenstrom und damit weitere Verstärkungsabnahme zur Folge haben könnte. Es war vielmehr erwünscht, dies mit Hilfe der Herabsetzung der Schwelle auszugleichen, was nur unter Berücksichtigung der entsprechenden Eichkurven möglich war.

3.1.3 Bestimmung der elektronischen Nachweisschwelle für die Spaltkammer

Eine genaue Bestimmung der Ansprechwahrscheinlichkeit des Spaltdetektors setzt die genaue Bestimmung der elektronischen Nachweisschwelle ϵ_e voraus. Die Meßanordnung zur Bestimmung von ϵ_e ist in Abb. 3 wiedergegeben.

Mit Hilfe der Impulshöhenverteilung der Spaltfragmente aus der Spontanspaltung von ^{252}Cf ($E_\alpha = 6,1 \text{ MeV}$, $E_{\text{sph}} = 80,2 \text{ MeV}$) wurde eine Energieskala zwischen 0-80 MeV festgelegt. E_{sph} entspricht der Energie des schweren Fragments. Die ^{252}Cf -Quelle wird nach einer solchen Eichung aus der Kammer entfernt und die Lumineszenzdiode als Lichtquelle während des Betriebs eingesetzt. Sie wird mit dem schnellen Testimpulsgenerator angesteuert.

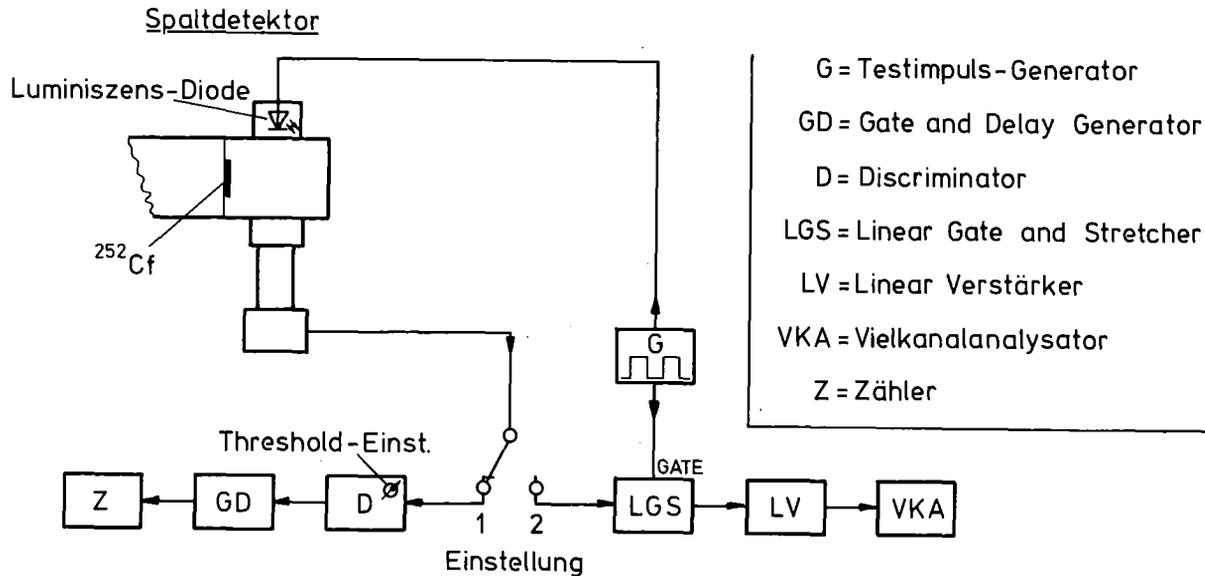


Abb. 3 Blockschaltbild der Meßapparatur zur Einstellung und Überwachung der Detektorverstärkung

Der entsprechende Lichtimpuls wird mit Hilfe eines linearen Gates und Stretchers geeignet geformt, danach im Vielkanal-Analysator analysiert (Einstellung 2). Die Lage der Linie wird durch die zuvor erfolgte Energieeichung einer bestimmten Energie E_K zugeordnet. Durch Umschalten des Schalters auf Einstellung 1 (vgl. Abb. 3) wird das Anodensignal dem Diskriminator, der geeicht werden soll, zugeleitet. Die Diskriminatorschwelle wird sodann solange variiert, bis 50 % der Testgeneratorimpulse im elektronischen Zähler nachgewiesen werden. Die eingestellte Diskriminatorschwelle entspricht dann genau der Energie E_K , die zuvor im Vielkanal-Analysator-Spektrum bestimmt wurde. Um weitere Meßpunkte zu erhalten, wurde die Höhe des Ansteuerimpulses variiert. Die Abb. 4c zeigt das Ergebnis dieser Messung.

Nach Einbau der Pu-bzw. U-Proben in der Kammer wurde die Diskriminatorschwellen so eingestellt, daß die Untergrundzählraten aus zufälligen α -Pile-up-Koinzidenzen pro Pu-Folie bei ca. 0.5 Ereignissen pro Sekunde lagen (bei U sehr viel weniger). Damit wurde erreicht, daß das Verhältnis von Untergrund zu neutroninduzierter Spaltzählrate stets kleiner als 1 % war.

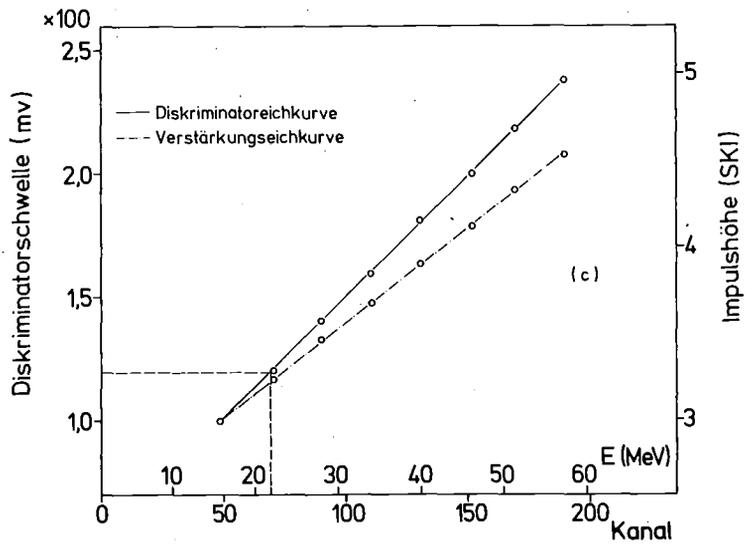
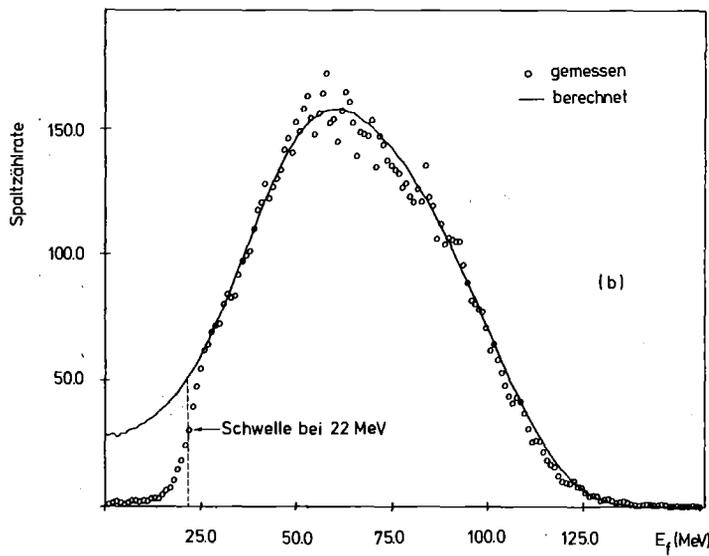
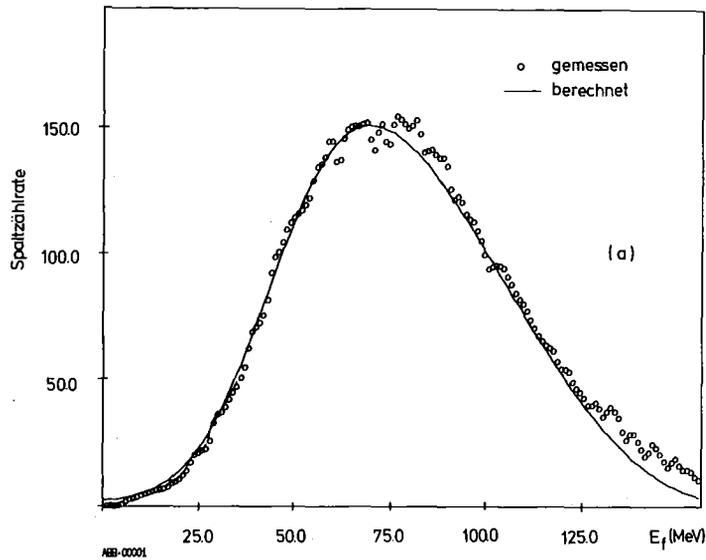


Abb. 4 a,b. Impulshöhenspektren aus der ²³⁹Pu-Messung und berechnete Koinzidenzspektren a) ohne b) mit Backing
 Abb. 4 c . Eichkurven für Spaltdetektorverstärkung als Funktion der Impulshöhe und Diskriminatorchwel len als Funktion der Neutronenenergie in MeV.

Die elektronische Nachweisschwelle ϵ_e bei dieser Einstellung der Diskriminatoren wurde von der Eichkurve Abb. 4 b,c abgelesen. Sie beträgt ca. 17 ± 2 MeV für die Uranspaltkammer. Eine etwas höhere Schwelle von 22 ± 2 MeV wurde für die Plutoniumspaltkammer gewählt, da erst bei dieser Energie eine genügende Unterdrückung des α -Pile-up möglich war.

Es wurden gleichzeitig die neutroneninduzierten Spaltereignisspektren (Analogspektren) der Plutoniumspaltfolien gemessen. Abb. 4 a,b zeigt das Ergebnis dieser Messung für eine ^{239}Pu -Spaltfolie. In diesen Spektren sieht man den Einfluß der elektronischen Nachweisschwelle deutlich. Beim Ablesen der Kanallage der Schwelle im Zusammenhang mit der Energieeichung sieht man, daß die so bestimmte Energie der Schwelle auf $\pm 0,5$ MeV in guter Übereinstimmung ist mit dem Wert, welcher aus der Diskriminatoreichung erhalten wurde.

3.1.4 Messung der Zeitauflösung

Die Zeitauflösung der Spaltkammer wurde mit Hilfe einer ^{252}Cf -Quelle gemessen. Dabei wurden die Spaltfragmente aus der Spontanspaltung mit dem Spaltdetektor, die prompte Neutronen- und Gammastrahlung mit einem Plastiksintillator (Zeitauflösung < 1 nsec) nachgewiesen. Das Plastiksintillatorsignal als Startsignal und das Spaltdetektorsignal als Stoppsignal wurden einem Zeit-zu-Impulshöhenkonverter zugeführt. Mit dieser Methode wurde eine Zeitauflösung der gesamten Elektronik von 3 nsec gemessen. Berücksichtigt man nun den Beitrag des Plastiksintillators zur Verbreiterung des gemessenen Zeitpeaks, so resultiert daraus eine Zeitauflösung für den Spaltdetektor von ca. 2,7 nsec.

3.1.5 Spaltdetektoransprechvermögen

Das Ansprechvermögen des Spaltdetektors ϵ_{SP} gibt die Wahrscheinlichkeit an, mit der ein neutroneninduziertes Spaltereignis mit dem Zähler nachgewiesen wird. Die genaue Kenntnis dieser Größe ist, wie später gezeigt wird, sowohl für die Bestimmung von Spaltquerschnittsverhältnissen als auch von absoluten Spaltquerschnitten erforderlich. Ein wichtiger Vorteil des hier verwendeten

Zählers ist seine hohe Ansprechwahrscheinlichkeit, die nahe bei eins liegt. Dennoch ist sie trotz der großen Dimensionen, die größer sind als die Spaltproduktreichweiten, nicht genau 100 %, weil die Spaltprodukte z.B. in der Folie selber steckenbleiben oder mit so kleiner Energie austreten können, daß sie unterhalb der elektronischen Nachweisschwelle liegen. Das kommt dann vor, wenn die Flugrichtung eines Spaltfragmentes mit dem Neutronenstrahl einen großen Winkel θ einschließt.

Das Ansprechvermögen der Spaltdetektoren wurde mit einem im Rahmen dieser Arbeit modifizierten Programm /20/ berechnet, das im folgenden kurz beschrieben werden soll. Das Ansprechvermögen ist als das Verhältnis der nachgewiesenen zu insgesamt ausgelösten Spaltereignissen definiert. Es wird durch das Verhältnis des zu dem Winkel θ_{\max} gehörenden Raumwinkels zum gesamten Raumwinkel berechnet, wobei oberhalb des Winkels θ_{\max} keine Spaltereignisse mehr nachgewiesen werden können.

$$\epsilon_{\text{SP}}(E) = B(E) \frac{2\pi \int_0^{\theta_{\max}} A(\theta) \sin\theta \, d\theta}{2\pi}$$

Durch die Funktion $A(\theta)$ wird die Anisotropie der Spaltfragmentverteilung berücksichtigt. Die Funktion $B(E)$ beschreibt die Anisotropie aufgrund des Impulsübertrages des Neutrons auf das spaltende System.

Die Werte der Funktion $A(\theta)$ wurden von Simmons-Blumberg et al. /21,22/ gemessen. Sie können den Tabellen ihrer Veröffentlichung entnommen werden. Für die Bestimmung des Winkels θ_{\max} wird die Kenntnis der Energieverluste der Spaltfragmente in der Spaltfolie sowie der Höhe der elektronischen Nachweisschwelle des Spaltdetektors in MeV vorausgesetzt. Die Bestimmung der elektronischen Nachweisschwelle ist in Abschnitt 3.1.3 beschrieben. Die Energieverluste der Spaltfragmente im Zähler hängen von Entstehungsort und Flugrichtung in der Spaltfolie ab. Daher wurde bei ihrer Berechnung der Entstehungsort durch eine Unterteilung der Folie in 15 Schichten kontinuierlich geändert und die Flugrichtung zwischen 0 und θ_{\max} in 1000 Schritten variiert. Am Entstehungsort wurde für das schwere und das leichte Fragment die mittlere Energie, Masse und Ladung verwendet, wie sie von Unik et al. /23/ gemessen wurde. Als Energieverluste der Spaltfragmente wurden die für jeweils zwei Schwerionen angenommen, deren Ladungen den mittleren Ladungen entsprechen /23/. Für das schwere und das leichte Fragment

wurden für ^{239}Pu und ^{240}Pu die Energieverluste für Xe und Zr und für ^{235}U die von Xe- und Sr-Ionen verwendet. Die spezifischen Energieverluste dieser Ionen im Spaltmaterial (^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{235}U) sowie in den Trägerfolienmaterialien (O, C, H, Al, Ag) sind der Tabelle /24/ entnommen. Zur Bestimmung der Anfangsenergie der Spaltfragmente wurde der Impulsübertrag vom Neutron auf den spaltenden Kern berücksichtigt. Das führte zu einer Zu- bzw. Abnahme der mittleren Energie der vorwärts- bzw. rückwärts fliegenden Spaltfragmente.

Man berechnet nun die Energieverluste der beiden Fragmente für einen Winkel θ zwischen θ_i und θ_{i+1} und subtrahiert sie von deren Anfangsenergie. Ist die Restenergie der beiden Spaltfragmente größer als die eingestellte Energie der elektronischen Schwelle, dann wird das Ereignis registriert und zum vorherigen Anteil der nachgewiesenen Fälle hinzuaddiert. Ist die Restenergie kleiner als die elektronische Schwelle, dann wird dieses Ereignis nicht nachgewiesen und damit die obere Grenze des Integrals θ_{\max} erreicht. Das Ansprechvermögen des Spaltdetektors wurde für Neutronenenergien zwischen 1 und 20 MeV berechnet. Die Abb. 5 zeigt das Resultat dieser Rechnung für zwei verschiedene Spaltfolien. Die Kurve (a) zeigt das Ergebnis für eine ^{239}Pu -Folie mit einer Massenbelegung von $166 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ und (b) das Ergebnis für eine ^{235}U -Folie mit einer Massenbelegung von $780 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. In beiden Fällen bestand die Trägerfolie aus $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ Vyns und einer Al-Auflage von $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

Der Neutronenimpulsübertrag auf den spaltenden Kern nimmt mit Erhöhung der Neutronenenergie zu und führt zur Zunahme der Spaltfragmentenergie in Vorwärtsrichtung. Da das Backing zum Neutronenstrahl abgewandt war, bewirkte dies eine geringere Absorption der Spaltfragmente in der Spaltfolie und damit eine Zunahme des Ansprechvermögens. Die vor allem in der unteren Kurve ausgeprägt auftretenden Maxima sind auf entsprechende Maxima in der Anisotropie der Spaltproduktverteilungen zurückzuführen /21,22/.

Die Unsicherheit bei der Bestimmung der elektronischen Nachweisschwelle sowie die Anwendung der Tabelle /24/ zur Berechnung der Energieverluste bilden die wesentlichen Fehlerquelle bei der Bestimmung der gesamten Ansprechwahrscheinlichkeit der Spaltzähler. Das Programm liefert eine Änderung in der Ansprechwahrscheinlichkeit von 0,6 % bei Änderung der Schwellenenergie um ± 2 MeV.

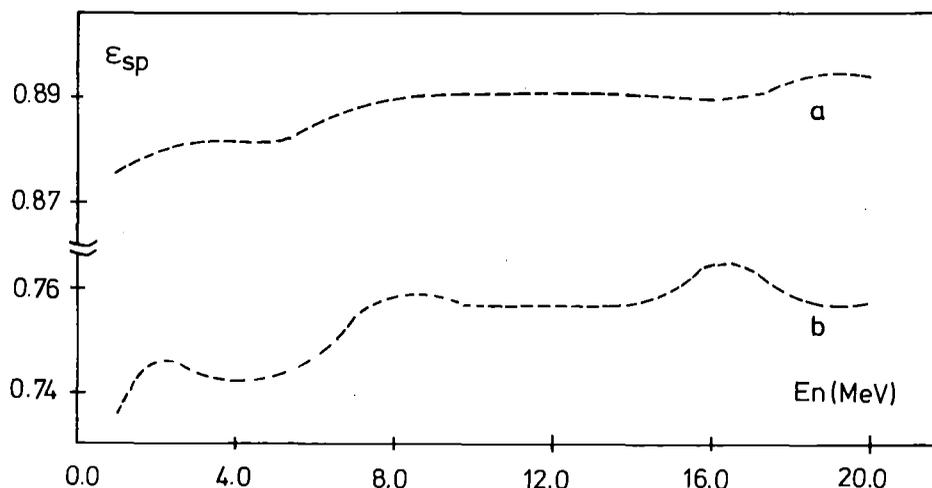


Abb. 5. Berechnete Ansprechwahrscheinlichkeit der Spaltdetektoren für eine Kammer
a) mit ^{239}Pu -Folie,
b) ^{235}U -Folie

Die Struktur der Kurven rührt von der Anisotropie der Spaltfragmentverteilung her, die bei verschiedenen Energien ausgeprägte Maxima aufweist.

Zusätzlich ändert sich die Ansprechwahrscheinlichkeit um $\pm 1,1\%$ bei Änderung der datenspezifischen Energieverluste dE/dx /24/ um $\pm 10\%$. Damit liegt der resultierende Fehler der Ansprechwahrscheinlichkeit, der nahezu von der Neutronenenergie unabhängig ist, bei $1,25\%$.

Die Übereinstimmung zwischen der gemessenen bzw. berechneten Impulshöhenspektren (Abb. 4 a und b) bestätigt die Brauchbarkeit der Rechnung für die Abschätzung von ϵ_{SP} .

3.2 Die Spaltfolien

Die Plutonium- bzw. Uranproben wurden von der "Sample Preparation Group" des Büros für Kerndatenmessungen in Geel hergestellt. Das spaltbare Material wurde in Form von Oxid (PuO_2 , U_3O_8) mit Hilfe eines von Verdingh und Lauer /25/ beschriebenen Elektrosprayverfahrens auf Vyns-Träger-

folien aufgebracht. Dies geschah, nachdem die nicht leitende Trägerfolie mit Aluminium (bei ^{235}U und ^{239}Pu) bzw. Gold (bei ^{240}Pu) beschichtet war. Das Laboratorium in Geel hat ebenfalls die genaue Massenbestimmung der Folie vorgenommen, welche auf einer α -Zählung und einer massenspektroskopischen Analyse des Materials beruht. Die Genauigkeit der Massenbestimmung wird zu 0,5 % angegeben. Die Spaltfolien wurden hintereinander in Abständen von ca. 8 cm mittels Ringen gehalten, die miteinander durch Abstandsstäbe starr verbunden sind (siehe Abb. 1).

Bezüglich der optischen Undurchlässigkeit der ^{240}Pu -Folie (Goldbelag) war zu Beginn des Experiments nicht klar, ob diese genügend gewährleistet war. Daher wurde die Güte der optischen Trennung mit Hilfe einer starken Neutronenquelle getestet- Dabei wurden die neutroneninduzierten Spaltungen in der ersten Spaltfolie registriert. Wäre nun die benachbarte Spaltfolie lichtdurchlässig, dann würde ein Teil dieser Szintillationen gleichzeitig als Spaltereignisse in der benachbarten Spaltfolie registriert. Dieser Teil wird durch eine Koinzidenzschaltung zwischen den Multipliern links der ersten und rechts der benachbarten Spaltfolie erfaßt. Das Verhältnis aus der Zahl der Koinzidenzen zwischen einer nicht benachbarten Kammer und der unmittelbar benachbarten Kammer lag bei 0,1 %. Dieses Verhältnis ist in Übereinstimmung mit der Zahl der zu erwartenden Zufallskoinzidenzen, so daß eine optische Kopplung zweier benachbarter Kammern ausgeschlossen werden konnte.

Bei der Messung von $\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ wurden drei ^{235}U - und vier ^{239}Pu -Spaltfolien verwendet. Bei dem zweiten Experiment zur Messung von $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ wurde jeweils eine einzige Spaltfolie eingebaut. Die Massenbelegung der Folien, die Dicken der Trägerfolien und die Aluminium-bzw. Goldauflage sind zusammen mit der Isotopenzusammensetzung des Spaltmaterials in Tabelle 1 zusammengefaßt.

Spaltmaterial	Folien	Massenbelegung des spaltb.Materials ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)	Massenbelegung der Trägerfolien ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)			Isotopenzusammensetzung (%)								
			Al	Au	Vyns	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu
^{239}Pu	1	166.1												
	2	149.8												
	3	164.1	20		100				0.008	96.02	3.86	0.10	0.008	
	4	177.3												
^{235}U	5	730												
	6	784	20		170	1.08	93.33	0.20	5.39					
	7	803												
^{240}Pu	1	184.5		15	100				0.01	0.74	98.39	0.58	0.28	
^{235}U	2	449	20		170	1.08	93.33	0.20	5.39					

Tabelle 1: Massen und Isotopenzusammensetzung der Pu- bzw. U-Proben, sowie der zugehörigen Trägerfolien

4. DIE MESSAPPARATUR

4.1 Flugzeitspektrometer

Die Spaltquerschnittsmessungen wurden mit dem Neutronenflugzeitspektrometer am Karlsruher Isochronzyklotron gemessen. Das Spektrometer wurde schon mehrfach ausführlich in /26,27/ beschrieben, daher sollen hier nur die charakteristischen Merkmale der Anlage wiederholt werden.

Im Normalbetrieb liefert das Zyklotron Teilchenimpulse mit einer Folgefrequenz von 33 MHz. Diese Frequenz ist für Flugzeitexperimente zu hoch, um bei Messungen mit einem langen Flugweg von ca. 57 m noch eine eindeutige Energiezuordnung zuzulassen. Durch Verwendung eines Ablenkensystems von zwei gekoppelten elektrostatischen Deflektoren wird die Frequenz von 33 MHz auf 100 kHz reduziert. Während dabei die Frequenz im Verhältnis 330 : 1 untersetzt wird, liegt die Abnahme der Intensität nur bei 6 : 1. Dabei bleibt die Breite der Feinstrukturimpulse (1-1,5 nsec) erhalten. Mit diesem Ablenkensystem werden Deuteronen der Energie ~ 45 MeV axial ausgelenkt und auf ein 2 mm dickes Urantarget geschossen. Darin werden sie vollständig abgebremst und erzeugen einen intensiven Neutronenstrahl. Das Spektrum der Neutronen liefert genügend Intensität, um Messungen im Energiebereich zwischen 0,5 - 30 MeV zuzulassen.

Abb. 6 zeigt den geometrischen Aufbau des Neutronenflugzeitspektrometers. Der Neutronenstrahl durchfliegt ein evakuiertes Flugrohr. Er wird durch Eisen- bzw. Graphit-Kollimatoren, die bei den Entfernungen 10 m, 37 m, 50 m von der Neutronenquelle aufgebaut sind, stark kollimiert. Im Abstand von ca. 57 m wurde der Neutronenfluß mit Hilfe eines Flußdetektors nachgewiesen. Die Energie der Neutronen wurden mit Hilfe der relativistischen Energie-Geschwindigkeitsrelationen aus der Zeit berechnet, die zwischen ihrer Entstehung und ihrem Nachweis vergeht. Aus Intensitätsgründen wurde die Spaltkammer in einer Entfernung von ca. 11 m vom Target aufgebaut. Es wurden thermische Neutronen, die von Mehrfach-Streuprozessen, z.B. an den Betonwänden des Zyklotronbunkers herrühren, durch Einsetzen eines Cadmiumfilters vor der Spaltkammer absorbiert.

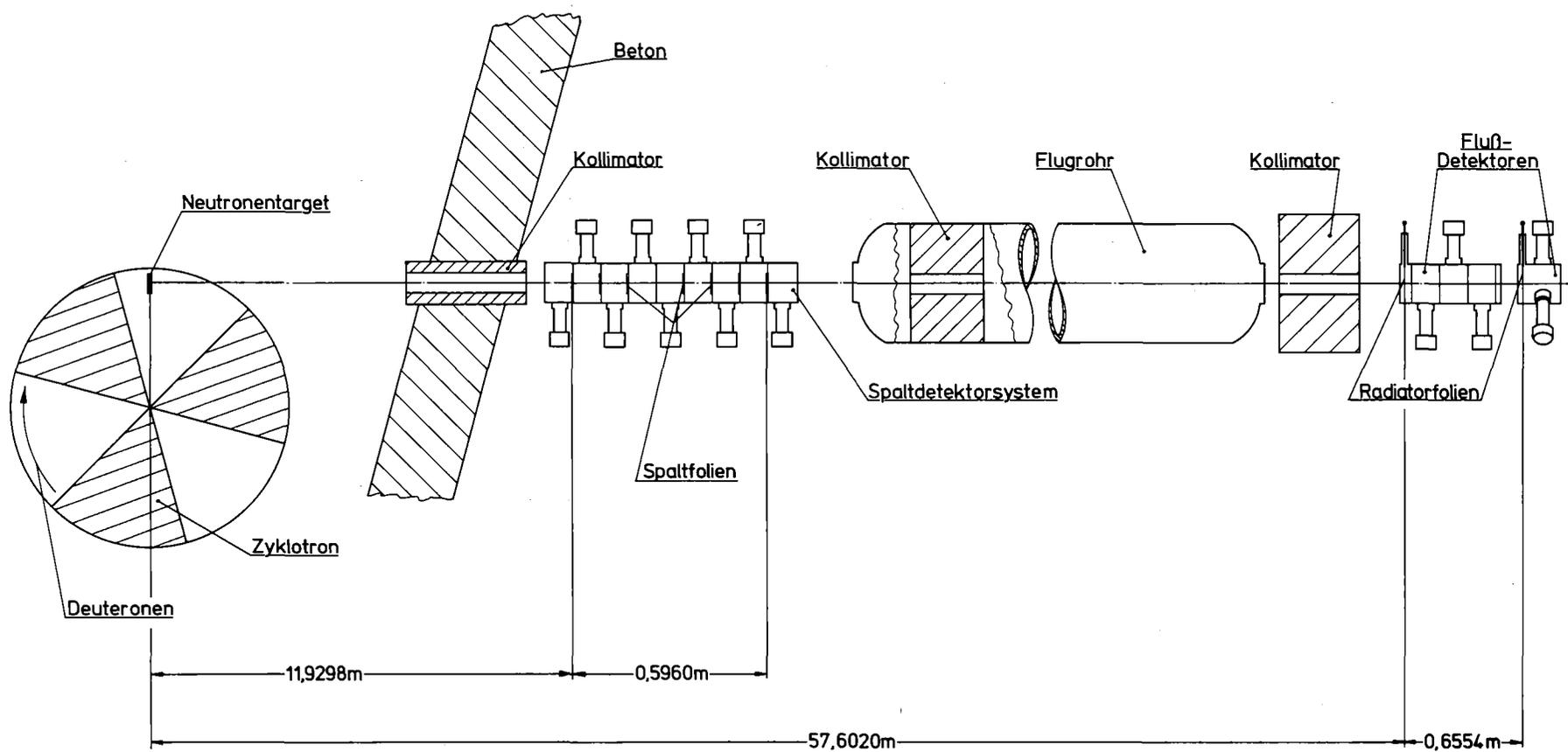


Abb. 6. Geometrischer Aufbau des Neutronenflugzeitspektrometers mit dem Spalt- und Flußdetektorsystem.

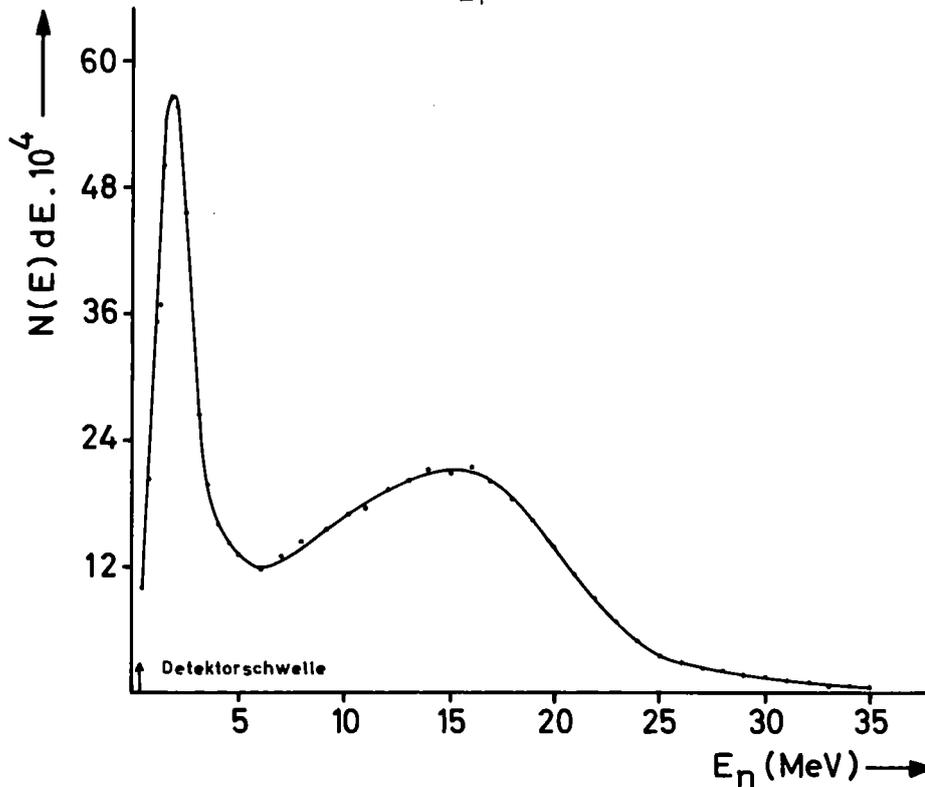


Abb. 7. Typisches Neutronenenergiespektrum für ein dickes Urantarget

Abb. 7 zeigt das Energiespektrum der Neutronen, die bei Beschuß von dicken Urantargets mit Deuteronen von 45 ± 5 MeV entstehen. Die Neutronen im Bereich des Maximums bei ~ 16 MeV entstehen durch das Aufbrechen der Deuteronen im Coulomb- bzw. Kernfeld. Dabei laufen die Neutronen im wesentlichen mit gleicher Geschwindigkeit d.h. etwa der halben Energie der Deuteronen weiter. Die Verschiebung des hochenergetischen Peaks zu niedrigeren Energien als der halben Deuteronenenergie rührt daher, daß ein dickes Urantarget verwendet wurde, somit tragen Deuteronen aller Energie zwischen 0-50 MeV zur Neutronenerzeugung bei. Unterhalb von 6 MeV ist die Verteilung weitgehend durch Neutronen aus Verdampfungs- und Spaltprozessen bestimmt. Abb. 7 zeigt deutlich, daß der nutzbare Energiebereich der Neutronen zwischen einigen hundert keV und etwa 30 MeV liegt.

Im Neutronenflugzeitspektrum liefert die Breite des prompten Gammastrahlungspeaks eine Information über die gesamte Zeitauflösung des Spektrometers (ca. 4 nsec). Seine Kanallage diente als Zeitnullpunkt bei der Berechnung der absoluten Neutronenenergie.

4.2 Die Flußdetektoren

4.2.1 Aufbau und Anordnung der Flußdetektoren

Für Neutronenenergien oberhalb von 100 keV muß jede genaue Messung von partiellen Wirkungsquerschnitten relativ zum H(n,p)-Standard erfolgen. Die H(n,p)-Reaktion ist z.Zt. die einzige Standardreaktion, die mit einer Genauigkeit von ca. 1,5 % im gesamten Bereich von 0,5 - 50 MeV bekannt ist. Dies ist durch zahlreiche experimentelle und theoretische Arbeiten /28,29/ bestätigt worden.

In dieser Arbeit wurde zur Messung des Neutronenflusses ein neuartiges, im Institut für Angewandte Kernphysik entwickeltes Detektorsystem verwendet. Dies bestand im wesentlichen aus zwei teleskopartigen Gasszintillationskammern, die als Transmissionszähler verwendet werden können /30/.

Die Flußmessung erfolgt über dünne Radiatorfolien aus Polypropylen. Durch die Wechselwirkung zwischen den Neutronen und den Wasserstoffkernen werden Protonen aus der Folie herausgeschlagen. Ihre Registrierung im Szintillationsgas dient zum Nachweis der Neutronen. Störreaktionen, die zur Erzeugung von Alphateilchen im Kohlenstoff führen, treten erst oberhalb von 6 MeV auf. Aus diesem Grund wurden für die Messung des Neutronenflusses in den Energiebereichen von 1-6 MeV (Detektor I) und von 5,8 - 20 MeV (Detektor II) zwei verschiedene Systeme verwendet worden. Der geometrische Aufbau der Flußdetektoren ist in Abb. 8 gezeigt.

Asl Gasszintillatoranordnung ist Detektor II dem Spaltdetektor ähnlich. Er besteht aus drei gleichen hintereinanderliegenden Szintillationskammern, die jeweils durch eine 7 µm dicke Tantalfolie optisch voneinander getrennt sind. Die Kammern werden ständig von einem Zählgas aus 85 % Argon und 15 % Stickstoff bei leichtem Überdruck durchflossen. Zur Registrierung der Szintillationen dienen drei Photomultiplier der Type DUVP 56, die durch ein Quarzfenster mit der Kammer verbunden waren. Die Länge der Kammer zwischen den Tantalfolien wurde so dimensioniert, daß störende Alpha-Teilchen erst mit Energien oberhalb von 20 MeV die dritte Kammer erreichen, die Protonen aber bereits mit Energien oberhalb von 5 MeV. Damit wird durch eine Dreifachkoinzidenzschaltung für alle 3 Kammern der Alpha-Untergrund unterhalb von $E_n = 20$ MeV diskriminiert. Zusätzlich wird das Rauschen praktisch

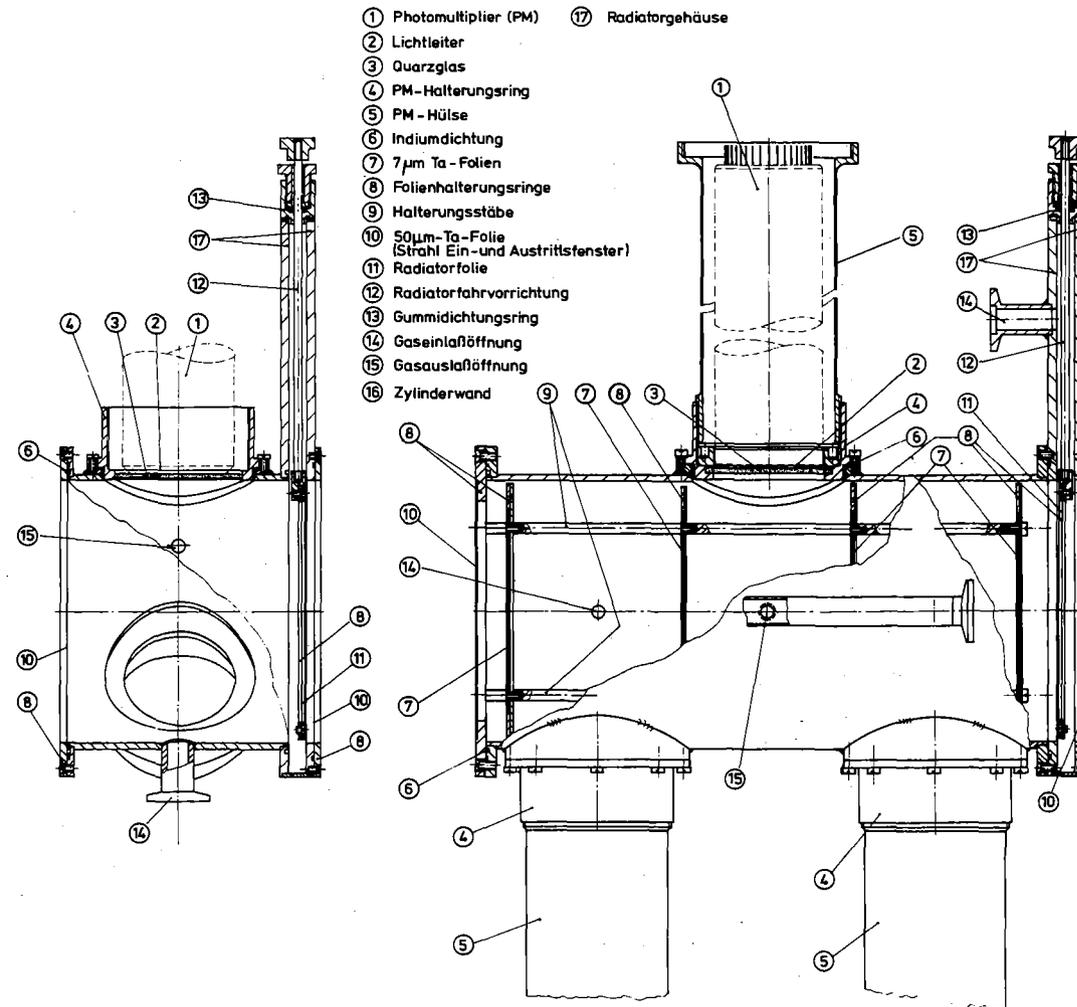


Abb. 8. Aufbau der Neutronenflußdetektoren I (links im Bild) und II (rechts im Bild).

vollständig unterdrückt.

Bei Neutronenenergien kleiner als 6 MeV traten keine störenden (n,α) -Reaktionen an C auf. Daher konnte Detektor I aus einer einzigen Szintillationskammer bestehen, die von drei Photomultipliern gleichzeitig beobachtet wird. Diese sind auf dem Zylindermantel der Kammer unter einem Winkel von jeweils 120° gegeneinander versetzt angeordnet. Das Rauschen wurde hier aufgrund eines Dreifachkoinzidenz für alle drei Multiplier unterdrückt.

Mit Hilfe einer ^{241}Am -Alphaquelle wurden die drei Multiplier je eines Flußdetektors auf gleiche Verstärkung abgeglichen und die elektronische Nachweisschwelle auf ca. 150 keV eingestellt. Dies geschah dadurch, daß die Photomultiplierspannung solange erhöht wurde, bis die aufgrund der Alpha-Energieeichung ermittelte Schwellwertenergie gerade die minimale Schwellwertspannung von 50 mV der Diskriminatoren erreichte. Eine weitere Verstärkungserhöhung, die zur wünschenswerten Erniedrigung der elektronischen Nachweisschwelle geführt hätte, wurde durch eine zu starke Zunahme der Rauschzählrate verhindert. Zur Messung des Zähleruntergrunds konnten die Kohlenwasserstoffolien in beiden Flußdetektoren während der Spaltquerschnittsmessung aus dem Neutronenstrahl entfernt werden.

Durch die gewählte Dimensionierung der beiden Flußdetektoren war es möglich, den Neutronenfluß im Energiebereich von 5,8 bis 6,6 MeV mit beiden Zählern gleichzeitig zu messen. Da die beiden Detektoren im selben Neutronenfluß aufgestellt waren, lieferte der Vergleich der beiden Messungen in diesem Bereich eine Möglichkeit, die Genauigkeit der Flußmessung zu überprüfen. Letzteres konnte zusätzlich auch dadurch erfolgen, daß die Ansprechwahrscheinlichkeiten der Einzelkammer (Detektor II) bzw. der einzelnen Photomultiplier (Detektor I) mit Hilfe des Verhältnisses von Dreifach-zu-Zweifach-Koinzidenzen experimentell bestimmt werden konnte. Ein Vergleich der entsprechenden Werte mit den gerechneten Größen erlaube eine weitere wichtige Kontrolle. Auf diese Möglichkeit wird im nächsten Abschnitt näher eingegangen.

4.2.2 Das Ansprechvermögen der Flußdetektoren

Das Ansprechvermögen eines Flußdetektors gibt die Wahrscheinlichkeit an, daß ein einfallendes Neutron in Detektor auch tatsächlich nachgewiesen wird. Es ist dabei zu unterscheiden zwischen der Wahrscheinlichkeit, daß ein einfallendes Neutron in der Radiatorfolie ein Rückstoßproton erzeugt und der Wahrscheinlichkeit, daß ein einmal mit der (n,p)-Reaktion erzeugtes Proton auch am Ausgang des Zählers einen Zählimpuls liefert.

Die erste Wahrscheinlichkeit kann für dünne Folie so genau bestimmt werden, wie der Wirkungsquerschnitt der H(n,p)-Reaktion bekannt ist. Die zweite Wahrscheinlichkeit (Protonenansprechwahrscheinlichkeit ϵ_p) ist eine experimentelle Größe und muß sorgfältig bestimmt werden.

Die Protonenansprechwahrscheinlichkeiten der beiden Flußdetektoren sind zum erstenmal in diesem Experiment mit hoher Genauigkeit von ca. 2-3 % im Energiebereich 1-20 MeV gemessen worden. Zusätzlich wurden sie durch ein Monte-Carlo-Programm berechnet. Das Rechenverfahren ist schon ausführlich an einer anderen Stelle beschrieben worden /31/. Es soll hier aber nochmals auf den wesentlichen Rechengang eingegangen werden, da er zur Beurteilung der Genauigkeit der Flußmessung von Bedeutung ist.

Beim (n,p)-Streuprozeß wird auf das unter dem Winkel θ gestreute Proton die Energie $E_p = E_n \cos^2\theta$ übertragen, wobei E_n die Neutronenenergie vor dem Stoß ist. Unter der Annahme einer isotropen Streuung im Schwerpunktsystem läßt sich zeigen, daß die Energieverteilung der Protonen eine Rechteckverteilung darstellt. Bei der Messung der Rückstoßspektren mit dem Gasszintillator zeigt ihre tatsächliche Form jedoch eine Abweichung von der idealen Form. Dies wird bedingt durch die endliche Energieauflösung des Flußdetektors und den Einfluß der elektronischen Nachweisschwelle. Der Verlauf des Spektrums im Bereich der Schwelle und der Maximalenergie der Protonen haben wesentlichen Einfluß auf die Protonenansprechwahrscheinlichkeit des Zählers. Das Protonen-Ansprechvermögen für eine bestimmte Neutronenenergie wird durch Mittelung der Nachweiswahrscheinlichkeiten für die verschiedenen möglichen Protonenimpulse berechnet.

Dabei müssen neben der Anfangsenergie der gestreuten Protonen unter vorgegebenen Streuwinkel ihre entsprechenden Energieverluste in der Radiatorfolie und der Szintillationskammer und der genaue Verlauf der elektronischen Schwelle des Zählers berücksichtigt werden. Die Energieabgabe der Protonen im Szintillationsgas und damit die Möglichkeit, daß das Proton registriert wird, wird durch den Weg des Protons in der Kammer und dessen Energie am Entstehungsort bestimmt. Zur Berechnung der Ansprechwahrscheinlichkeit wurde die Radiatorfolie in Kreisringe gleicher Fläche und in Axialschichten gleicher Dicke unterteilt. Damit wurde erreicht, daß die gleiche Anzahl von Streueignissen in jedem Volumenelement des Radiators erzeugt wird. Dieses ist gewährleistet, weil die Homogenität des Neutronenstrahls die Streuung in jedem Volumenelement des Radiators gleich wahrscheinlich macht. Zusätzlich wurde der Streuraum mit $\sin^2\theta$ entsprechend der Umrechnung vom Schwerpunkt ins Laborsystem gewichtet. Dadurch wurde für jeden Entstehungsort der Streuraum in Kegelschichten unterteilt, in die jeweils die gleiche Zahl von Protonen hineingestreut wird; d.h., der Streuraum wurde in gleiche Abschnitte des Streuwinkels $\theta + \Delta\theta$ im Schwerpunktsysteme unterteilt.

Die gesamte Protonenansprechwahrscheinlichkeit als Funktion der Neutronenenergie $\epsilon^{(3)}(E)$ stellt wegen der Koinzidenzschtung eine Faltung der einzelnen Beiträge der drei Kammern (Flußdetektor II) bzw. Photomultiplier (Flußdetektor I) $\epsilon_i (i=1,3)$ dar.

Für die Zählrate $Z^{(3)}(E)$ des in Dreifach-Koinzidenz geschalteten Flußdetektors gilt

$$Z^{(3)}(E) = \Phi_n(E) \cdot \sigma_{np}(E) \cdot N \cdot \epsilon_1(E) \cdot \epsilon_2(E) \cdot \epsilon_3(E) \quad (1)$$

Dabei sind Φ_n : Neutronenfluß (Neutronen/cm²·sec)

σ_{np} : Wirkungsquerschnitt der H(n,p)-Reaktion

ϵ_i : Protonenansprechwahrscheinlichkeit der einzelnen SEV
bzw. Kammern (i=1-3)

N: Anzahl der Wasserstoffatome der Radiatorfolie

Analog gilt für die in Zweifachkoinzidenz geschalteten Multiplier 1 und 3

$$Z^{(2)}(E) = \Phi_n^{(E)} \cdot \sigma_{np}(E) \cdot N \cdot \epsilon_1(E) \cdot \epsilon_3(E) \quad (2)$$

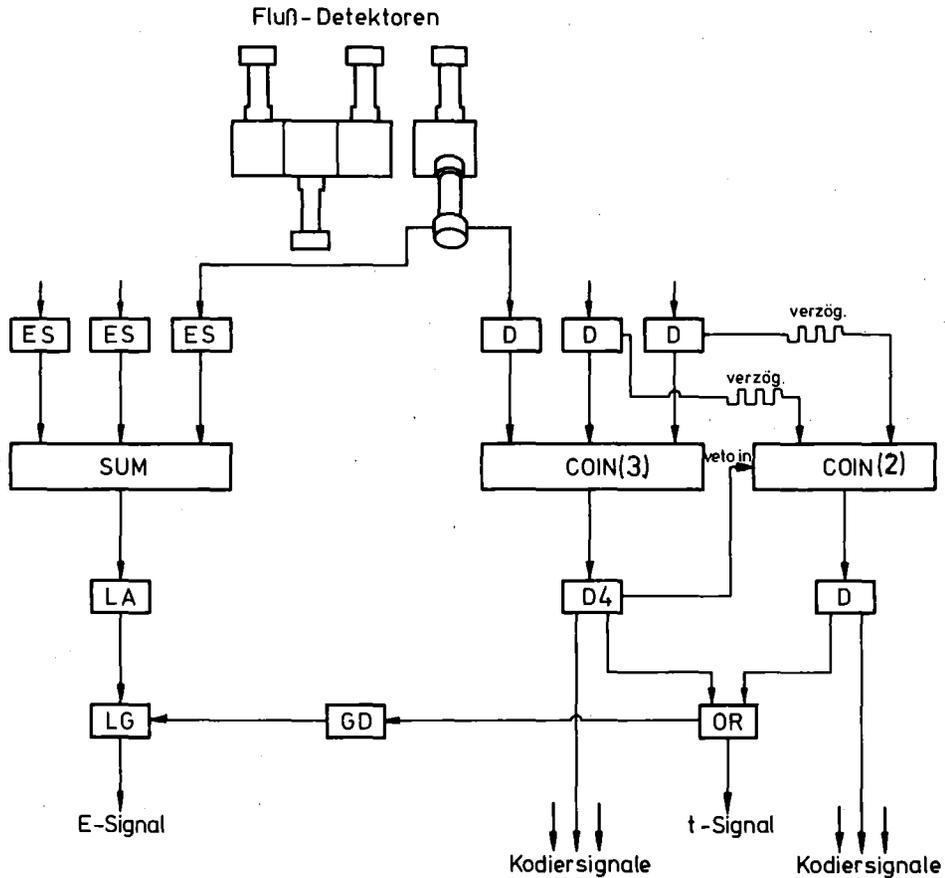
Dividiert man die beiden Gleichungen (1) und (2) durcheinander, so erhält man

$$\frac{Z^{(3)}(E)}{Z^{(2)}(E)} = \epsilon_2(E)$$

die Protonenansprechwahrscheinlichkeit des zweiten Multipliers. Die gleichzeitige Messung von Zweifachkoinzidenzen zusammen mit den Dreifach-Koinzidenzen bietet also eine gute Möglichkeit, aus Zählratenverhältnissen die Einzelansprechwahrscheinlichkeit experimentell zu bestimmen und mit den Berechnungen zu vergleichen. Abb. 9 zeigt die elektronische Schaltung zur Messung des Ansprechvermögens von Flußdetektor I.

Von jedem Multiplier der Flußdetektoren wird ein Zeitsignal von der Anode abgeleitet. Die Anodensignale der drei Multiplier im Flußdetektor I werden über die schnellen Diskriminatoren einerseits zur Dreifachkoinzidenz geleitet, die Signale von den Multipliern 1 und 3 zusätzlich auch auf eine Zweifachkoinzidenzstufe. Um die Ansprechwahrscheinlichkeit $\epsilon_2(E)$ als Funktion der Neutronenenergie zu messen, müssen die beiden Koinzidenzzählraten nach ihrer Flugzeit getrennt gemessen werden. Dies bereitet insofern Schwierigkeiten, als durch die Registrierung gleichzeitiger Ereignisse eine eindeutige Kodierung und damit eine eindeutige Identifizierung der Art der Koinzidenz unmöglich war.

Diese Schwierigkeit wurde dadurch umgangen, daß in den Fällen, in denen Zweifachkoinzidenzen zusammen mit Dreifachkoinzidenzen auftraten, nur das Signal der Dreifachkoinzidenz zur Analyse auf den Timesorter zugelassen wurde. Dies geschah durch Schaltung des vom Diskriminator D_4 abgeleiteten Signals auf den Vetoegang der Koinzidenzstufe 2. In den Fällen, in denen zwar eine Zweifachkoinzidenz, aber nicht gleichzeitig eine Dreifachkoinzidenz auftrat, wurde mit dieser Schaltung nur das Signal vom rechten Zweig in den Timesorter analysiert. Die Zahl der gesamten Zweifachkoinzidenzen ergibt sich dann aus der Summe der Dreifach- und der Zweifachkoinzidenzen.



COIN = Voter Coincidence	LA = Linear Amplifier
D = Updating Discriminator	LG = Linear Gate and Slow Coincidence
ES = Entkopplungsstufe	OR = OR-Stufe
GD = Gate and Delay Generator	SUM = Sum - Invert Amplifier

Abb. 9. Blockschaltbild der Elektronik eines Neutronenflußdetektors

Wegen des symmetrischen Aufbaus von Detektor I sollten alle einzelnen Ansprechwahrscheinlichkeiten $\epsilon_i (i=1,3)$ identisch sein. Es wurde aber festgestellt, daß diese Identität nur bei zwei Multipliern gewährleistet war. Der letzte Multiplier besaß während der Messung höhere Schwellen. Daher mußte die Ansprechwahrscheinlichkeit für diesen getrennt berechnet werden, die die gemessene Ansprechwahrscheinlichkeit $\epsilon_2(E)$ bis auf $\pm 1-2\%$ wiedergibt (Abb. 10 a). Damit war es möglich, die Energielage der höheren Schwelle festzulegen und die Ansprechwahrscheinlichkeit dieses Multipliers zu berechnen.

Um die gesamte Protonen-Ansprehwahrscheinlichkeit zu bestimmen, werden mit der bisherigen Überlegung die folgenden Effekte noch nicht erfaßt. Unter großen Streuwinkeln verbleibt den Protonen nur eine geringe Energie. Zusammen mit den entsprechend verlängerten Strecken, die die Teilchen in der Folie zurückgelegt haben, ergibt sich für diese eine große Wahrscheinlichkeit, daß die Protonen noch in der Radiatorfolie selbst steckenbleiben. Für diese Protonen gelten die ganzen Überlegungen bezüglich der Zählratenverhältnisse für Dreifach- bzw. Zweifachkoinzidenzen natürlich nicht. Der Bruchteil solcher Ereignisse an der gesamten Reaktionsrate muß deshalb gesondert berechnet werden.

Eine analoge Schaltung wie in Abb. 9 läßt sich für den Detektor II verwenden. Der geometrische Aufbau dieses Detektors ermöglicht jedoch nur die Messung der Einzelansprehwahrscheinlichkeiten der zweiten Kammer. Für die dritte Kammer, die zuletzt vom Neutronenstrahl beschossen wird, ist bei einer Koinzidenz zwischen den ersten beiden Kammern noch nicht gewährleistet, daß die Protonen auch die letzte Kammer erreichen, was aber für eine Dreifachkoinzidenz vorausgesetzt wird. Zusätzlich sind die einzelnen Ansprehwahrscheinlichkeiten ϵ_1 dieses Detektors auch bei gleicher Einstellung der Multiplier aus zwei Gründen nicht identisch. Zum ersten, weil die Protonen auf ihrem Flugweg abgebremst werden und damit unterschiedliche Energien in den drei Kammern abgeben ($\Delta\epsilon_3 > \Delta\epsilon_2 > \Delta\epsilon_1$). Zum zweiten, weil dieser Detektor nur solche Protonen registriert, die in den Raumwinkel zwischen $0-24^\circ$ fliegen. Das führt zu Randeffekten in der dritten Kammer und damit (wie Abb. 10 b zeigt) zu einer niedrigeren Ansprehwahrscheinlichkeit als in den ersten beiden Kammern.

Die Messung der mittleren Detektoransprehwahrscheinlichkeit $\epsilon_2(E)$ von Detektor II liefert also keine direkte Möglichkeit zur Ermittlung der gesamten Ansprehwahrscheinlichkeit. Ein Vergleich dieser gemessenen Größe mit der Rechnung bietet jedoch eine gute Kontrolle, die bei guter Übereinstimmung (1-2 % Abweichung) erwarten läßt, daß alle geringen Modifikationen, die sich aufgrund der etwas unterschiedlichen Geometrien und Energieverluste ergeben, durch die Rechnung ebenfalls gut wiedergegeben werden und keine wesentlichen zusätzlichen Fehler verursachen.

Die Methode zur Messung der Energie der Rückstoßprotonen, die zur Bestimmung der Schwellenenergien benötigt werden, ist in Abb. 9 im linken Zweig der Schaltung wiedergegeben. Die Analogsignale (Energiesignale) wurden von der 13. Dynode jedes Multipliers über eine Kollektorstufe auf eine Summierstufe gegeben. Der hohe Eingangswiderstand der Kollektorstufe besorgt eine Entkopplung zwischen den Multipliern und der nachfolgenden Elektronik. Ihr niedriger Ausgangswiderstand stellt eine ideale Spannungsquelle zur weiteren Verarbeitung des Signals dar. Durch die Summation der Analogsignale aller drei Multiplier in der Summierstufe war die Proportionalität zwischen den Protonenenergieverlusten und der Impulshöhe gewährleistet. Zum Analysieren wurde das Summensignal über ein lineares Gate nach entsprechender Verstärkung zum Analog-zu-Digital-Konverter weitergeleitet und anschließend an die Interfaceeinheit zur Registrierung der Rückstoßspektren weitergegeben.

Abb. 10 zeigt die gemessenen bzw. berechneten Protonenansprechwahrscheinlichkeiten für Neutronenenergien zwischen 1 und 6,5 MeV (a) und zwischen 5,8 - 20 MeV (b).

Im Falle des niederenergetischen Detektors ist der Abfall der Ansprechwahrscheinlichkeit unterhalb von 2 MeV auf den Einfluß der elektronischen Schwelle zurückzuführen. Mit fallender Neutronenenergie liegt ein stets größer werdender Bruchteil des Rückstoßprotonenspektrums unterhalb der Nachweisschwelle. Bei 2 MeV verbleibt nur noch ein Bruchteil von 75,8 % der Protonen, die den Schwellwert überschreiten. Der langsame Abfall der Kurve oberhalb von ca. 4 MeV hängt mit der Reichweite der Protonen in der Szintillationskammer zusammen. Protonen mit höherer Energie treffen bereits wieder auf die Rückwand des Szintillators und geben daher nur noch einen Teil ihrer gesamten Energie im Szintillatorgas ab. Dieser Bruchteil verkleinert sich mit wachsender Neutronenenergie und führt zu einer Abnahme der Ansprechwahrscheinlichkeit, wenn auch wesentlich langsamer als im Bereich nahe der Schwelle. Die Ergebnisse der Rechnung für diesen Detektor ist in Abb. 10 a mit dem Ergebnis der Koinzidenzmessungen verglichen. Korrekturen für die etwas verschiedenen Schwellen der Multiplier und die Protonenverluste in den Radiatorfolien wurden bei den gemessenen Ansprechwahrscheinlichkeiten berücksichtigt. Ein Vergleich zeigt, daß die Übereinstimmung der gemessenen und berechneten Werte oberhalb von 1 MeV überall besser als 2 % ist.

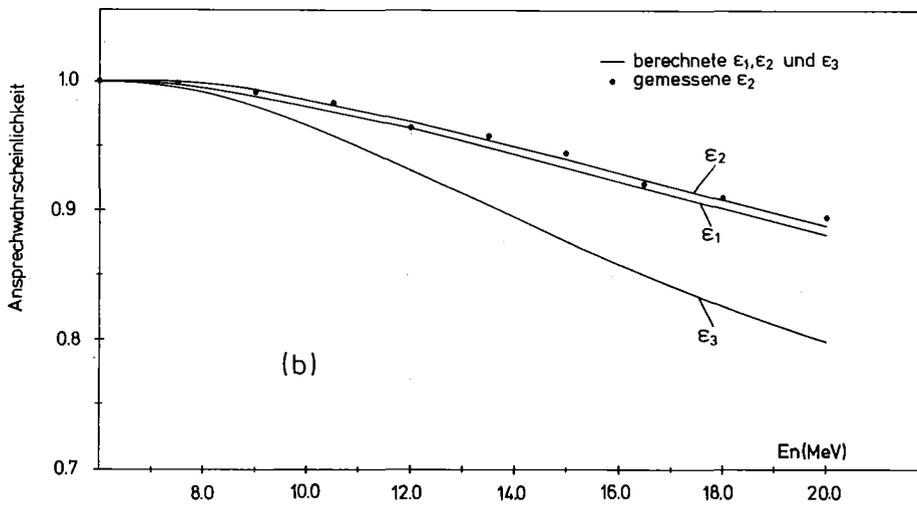
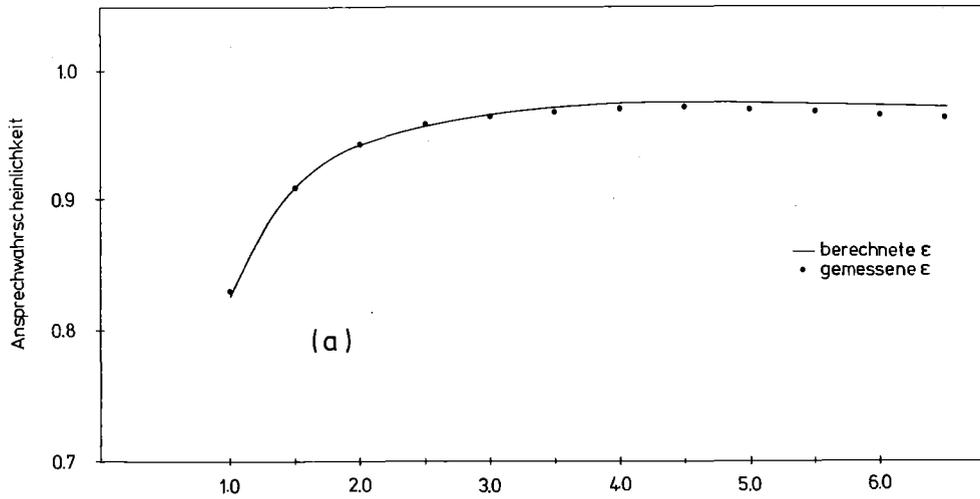


Abb. 10. Berechnete bzw. gemessene Ansprechwahrscheinlichkeiten der einzelnen Kammern im Flußdetektorsystem
a) Flußdetektor I im Neutronenenergiebereich zwischen 1 und 6 MeV
b) Flußdetektor II im Neutronenenergiebereich zwischen 6 und 20 MeV.

Bei Detektor II (5,8 - 20 MeV) liegen die Energieverluste der Rückstoßprotonen zwischen 6-9 MeV fast alle oberhalb der elektronischen Schwelle. Daher ist die Ansprechwahrscheinlichkeit in diesem Bereich nahezu energieunabhängig. Ihr Wert wird durch den Raumwinkel, in dem die Protonen registriert werden können (0° - 24°), bestimmt. Das in Zusammenarbeit mit Schouky entwickelte Rechenprogramm /31/ liefert für diese den konstante Wert $\epsilon_r = 0,0533$. Die gesamte Protonenansprechwahrscheinlichkeit ist durch eine Multiplikation aller drei Beiträge des Teleskops zu erhalten. Oberhalb von 9 MeV geben die Protonen immer weniger Energie ab, so daß ein Bruchteil von ca. 12 % in den einzelnen Kammern bei der Neutronenenergie $E_n = 20$ MeV unter die elektronische Schwelle fällt. In der dritten Szintillationskammer treten zusätzlich Randeffekte auf, d.h., daß Protonen mit großem Streuwinkel auf die zylindrische Kammerwand treffen und daher nur einen kleinen Teil ihrer gesamten Energie abgeben. Wegen dieses Effekts liegen bei $E_n = 20$ MeV ca. 7 % der Streueignisse unterhalb der Schwelle. Dadurch wird der steilere Abfall der Protonenansprechwahrscheinlichkeit der 3. Kammer im Vergleich zu den beiden übrigen verständlich. Das geringfügig andere Verhalten von ϵ_1 und ϵ_2 in Abb. 10 b erklärt sich allein aus dem bereits erwähnten schwach unterschiedlichen spezifischen Energieverluste in den beiden Kammern.

Die Abweichung zwischen den berechneten bzw. gemessenen Protonen-Ansprechwahrscheinlichkeiten liegt im ganzen Energiebereich zwischen 1 und 20 MeV unterhalb von 2 %. Diese Abweichung, die ein Maß für die Genauigkeit der Flußbestimmung darstellt, ist zum größten Teil auf die Unsicherheit bei der Bestimmung der elektronischen Schwelle und ihren Einfluß auf das Ergebnis der Rechnung zurückzuführen. Diese Unsicherheit steigt unterhalb von 1,5 MeV mit fallender Neutronenenergie bzw. oberhalb von 18 MeV mit zunehmender Neutronenenergie. Andere Fehlerquellen wie z.B. die Unsicherheit der zur Protonenverlustberechnung im Szintillator verwendeten Date aus /33/ sind bereits in der obigen Abschätzung enthalten. Zusätzlich liegen die Unsicherheiten beider Messungen der Radiatormassenbelegung bei ca. 0,5 %. Im Energiebereich zwischen 4,5 und 6 MeV ist die Abweichung (0,5 % - 1,5 %) auf die Randeffekte und die Unsicherheit bei der Bestimmung der Protonenenergieverluste zurückzuführen.

4.3 Elektronik

Das Blockdiagramm der elektronischen Apparatur zur Messung des Spaltquerschnitts ist in Abb. 11 wiedergegeben. Dabei liefern die an der Spaltkammer angeschlossenen Photomultiplier die eigentlichen Meßwerte der Spaltereignisse.

Das Zeitsignal der Photomultiplier gelangt auf einen schnellen Diskriminator, auf dessen normiertes Ausgangssignal die Koinzidenzstufen ansprechen, die jeweils ein Spaltereignis in einer bestimmten Spaltfolie registrieren. Die Koinzidenzsignale werden einzeln als Zählercode, der Kodiereinheit, daneben gleichzeitig über eine Mischstufe als Startsignal dem Timesorter zugeleitet. Die Kodiereinheit ordnet jedes Ereignis einem bestimmten Zähler zu und leitet diese Information an die Interfaceeinheit weiter. Der Zeitanalysator wird mit einem Signal des Deuteronenablenksystems gestoppt, welches zum Neutronenimpuls zeitlich fest korreliert ist. Aus diesen beiden Signalen ermittelt der digitale Timesorter die Flugzeit des zugehörigen, die Spaltung auslösenden Neutrons. Die dem Timesorter gelieferten Informationen werden von der Interfaceeinheit auf einen On-Line Rechner CDC 3100 übertragen.

Die Flugzeitspektren werden in zwei verschiedenen Bereichen im Rechner gespeichert, einmal im sogenannten Zwischenresultatbereich, der nach jeder Ausgabe auf Magnetband gelöscht und von neuem beschrieben wird, und zum anderen im Kontrollbereich, der nur auf einen besonderen Steuerbefehl gelöscht wird, so daß die Akkumulierung der Flugzeitspektren über längere Zeiträume an einem Sichtgerät beobachtet werden kann. Die Datenausgabe auf ein Magnetband in regelmäßigen Zeitabständen von ca. 15 min wird über einen Vorwahlzähler, der den Neutronenfluß registriert, und eine Probenwechselautomatik gesteuert. Diese Ausgabe in kurzen Zeiträumen hat den Vorteil, daß bei evtl. Störungen nur die wirklich fehlerhaften Meßdaten verworfen zu werden brauchen.

Damit nur die interessanten Ereignisse mit Neutronenenergien größer als 0,5 MeV erfaßt werden, wurde am Timesorter ein 10 μ sec langes Zeitfenster eingestellt, welches die maximale Meßdauer nach einem Startimpuls festlegt.

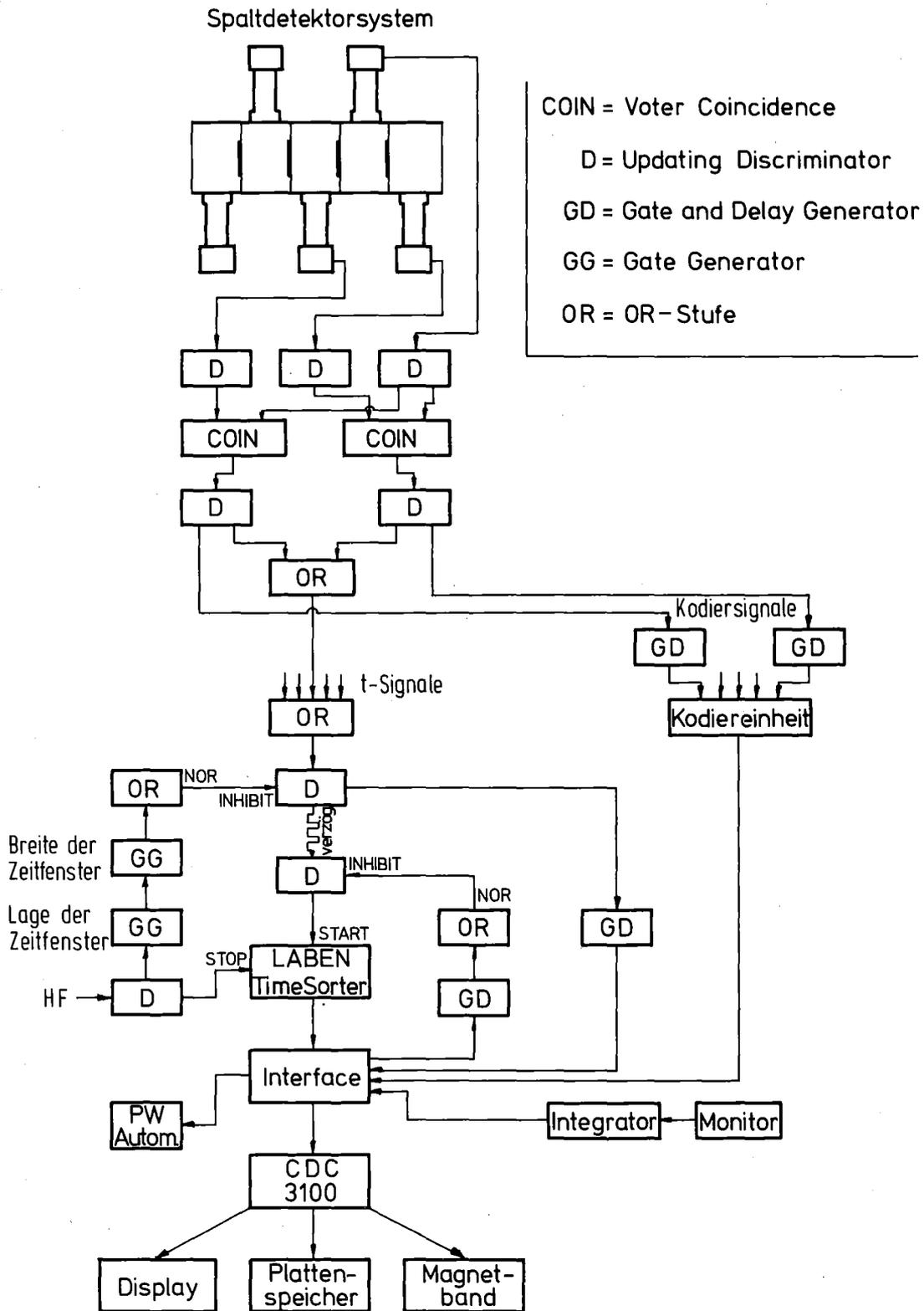


Abb. 11. Blockschaltbild der verwendeten Elektronik für die Datenerfassung des Spaltexperiments

5. AUSWERTUNG DER MESSERGESBNISSE

5.1 Neutronenflußbestimmung

Der Neutronenfluß ist durch die folgende Beziehung gegeben:

$$\phi_n(E) = \frac{Z^{(3)}(E)}{\sigma_{n,p}(E) \cdot N \cdot \epsilon_1(E) \cdot \epsilon_2(E) \cdot \epsilon_3(E) \cdot F_H}$$

wobei

$$\epsilon_i(E) = \frac{Z^{(3)}(E)}{Z^{(3)}(E) + Z^{(2)}(E)} \cdot S_i(E) \cdot K$$

Die Konstante K hat den Wert 1 bei dem Flußdetektor I und 0,0533 beim Flußdetektor II. Die Protonenverluste in der Radiatorfolie und die Korrekturen der etwas unterschiedlichen Schwellen sind in der Funktion $S_i(E)$ berücksichtigt. Die dreifach-koinzidenten Zählraten $Z^{(3)}(E)$ und die Zweifachkoinzidenzen $Z^{(2)}(E)$ der beiden Flußdetektoren, deren Radiatorfolien in verschiedenen Abständen von der Neutronenquelle eingesetzt sind, müssen auf den gleichen Abstand wie die Spaltzählrate bezogen werden. Abb. 12 zeigt den Verlauf des Flusses im Neutronenenergiebereich zwischen 1 und 20 MeV. Die verschiedenen Fehlerquellen bei der Bestimmung dieses Flusses sind in Tabelle 2 als Funktion der Neutronenenergie eingetragen.

5.2 Die Energiebestimmung

Die Neutronenenergie wurde unter Berücksichtigung der relativistischen Effekte kanalweise aus der Flugzeit nach folgender Formel /32/ berechnet.

$$E_n(\text{MeV}) = 52,268 v^2 + 4,3617 v^4 + 0,4044 v^6 + 0,394 v^8 + 0,0039 v^{10}$$

mit

$$v(\text{m/nsec}) = \frac{L}{\tau} = \frac{10}{(K_i - K_\gamma) \Delta K / L + t_\gamma}$$

Dabei ist τ : Neutronenflugzeit (nsec)

L: Länge des jeweiligen Flugweges (m)

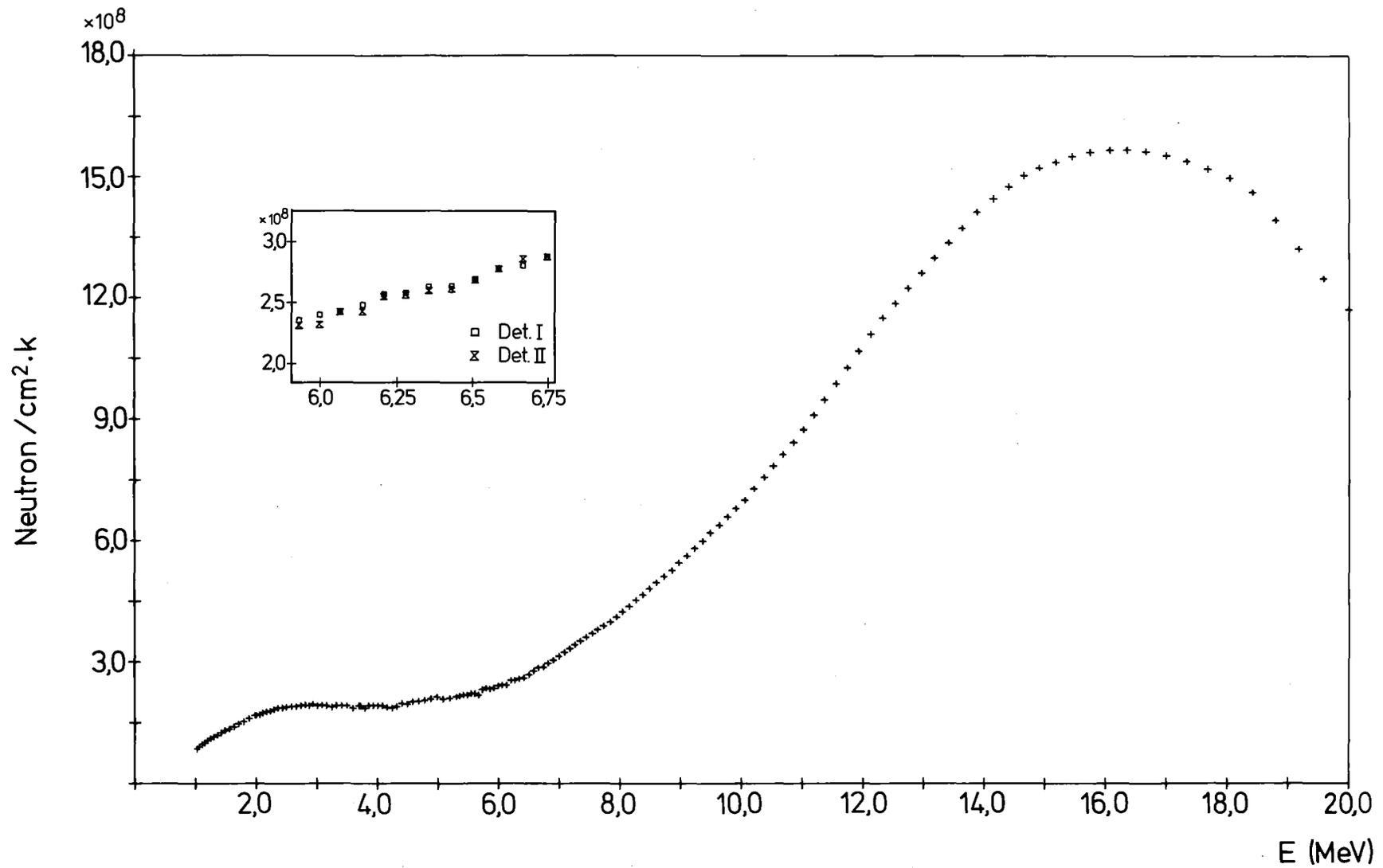


Abb. 12. Der gemessene Gesamtneutronenfluß in Abhängigkeit von der Neutronenenergie.
Die Flugzeitkanalbreite beträgt 2 nsec.

- K_{γ}, K_i : Die Kanallage der prompten Gammastrahlung bzw. die Kanallage irgendeines Ergebnisses im Flugzeitspektrum.
 ΔK : Kanalbreite (nsec)
 t_{γ} : Die Flugzeit der Gammaquanten pro Längeneinheit (nsec/m)

Zur Vereinfachung der Energiebestimmungen wurden alle prompten Gammapeaks der einzelnen Flugzeitspektren mit Hilfe des on-line Programms auf den gleichen Kanal gelegt ($K_{\gamma} = 200$). Zusätzlich wurden die bei verschiedenen Entfernungen vom Urantarget gemessenen Flugzeitspektren auf einen einheitlichen Flugweg, nämlich den kürzesten Abstand zwischen Quelle und einer Folie, normiert.

Die Genauigkeit der Neutronenenergiebestimmung wird durch die Unsicherheit in der gemessenen Neutronenflugzeit bzw. der Flugwegstrecke bestimmt. Zur Unsicherheit der Neutronenflugzeit tragen die folgenden Komponenten bei: Die Kanalbreite des Analysators (= 2 nsec), die Neutronenimpulsbreite (~ 1 nsec) und die Zeitauflösung des Detektors. Für die Spaltzähler beträgt die letztere 2,7 nsec, während der entsprechende Wert für die Neutronenflußzähler 6 nsec ausmacht. Daraus resultiert eine gesamte Zeitunsicherheit von 3,5 nsec bei der Messung der energieabhängigen Spaltquerschnitte und von 6,4 nsec bei der Messung des energieabhängigen Neutronenflusses. Die Unsicherheit wegen der Neutronenflugwegstrecke ist vernachlässigbar klein verglichen mit der Flugzeitunsicherheit, da der Neutronenweg auf 1 mm genau gemessen wurde. Daher ergeben sich für das Energieauflösungsvermögen der Spaltdetektoren im Energiebereich 1-20 MeV Werte zwischen 8-722 keV. Für den Flußdetektor liegen die entsprechenden Werte zwischen 3,1 - 278 keV.

5.3 Bestimmung der Spaltquerschnitte

Für den Spaltquerschnitt bzw. das Spaltquerschnittsverhältnis gilt allgemein, wenn ein nicht absolut isotonenreines Material verwendet werden kann

$$\sigma_{fP}(E) = \frac{Z_P(E)}{Z_H(E)} \cdot \frac{\epsilon_H(E)}{\epsilon_P(E)} \cdot \frac{N_H(E)}{N_P(E)} \cdot \frac{\sigma_{n \cdot P}(E)}{1 + \sum_{iP} \left(\frac{\sigma_{iP}(E)}{\sigma_{fP}(E)} \cdot \frac{N_{iP}}{N_P} \right)}$$

und

$$\frac{\sigma_{fP}(E)}{\sigma_{fU}(E)} = \frac{Z_P(E)}{Z_U(E)} \cdot \frac{\epsilon_U(E)}{\epsilon_P(E)} \cdot \frac{N_U}{N_P} \cdot \frac{1 + \sum_{iU} \left(\frac{\sigma_{iU}(E)}{\sigma_{fU}(E)} \cdot \frac{N_{iU}}{N_U} \right)}{1 + \sum_{iP} \left(\frac{\sigma_{iP}(E)}{\sigma_{fP}(E)} \cdot \frac{N_{iP}}{N_P} \right)}$$

Dabei sind

$\sigma_{fP}, \frac{\sigma_{fP}}{\sigma_{fU}}$	der absolute Spaltquerschnitt bzw. das Wirkungsquerschnittsverhältnis
Z_P, Z_U, Z_H	die untergrundkorrigierten Spalt- bzw. Protonenzählraten pro Flugzeitkanal und Sekunde
$\epsilon_P, \epsilon_U, \epsilon_H$	das Ansprechvermögen der Spalt- bzw. Flußdetektoren
N_P, N_U, N_H	Anzahl der spaltbaren Atome pro cm^2 für die Spaltfolien bzw. der H-Atome im Radiator
iU, iP	Laufindizes für verschiedene Isotope des Spaltmaterials
F_H	die Fläche des Radiators in cm^2
$\sigma_{n,p}$	Streuquerschnitt der Reaktion $H(n,p)$

Die Massenbelegungen $N_P, N_U, N_H, N_{iP}, N_{iU}$ sind aus den Massenanalysen bekannt /25/. Der Streuquerschnitt $\sigma_{n,p}$ ist nach der von Gammel /33/ angegebenen Vierparameterformel berechnet worden. Die Bestimmung der Ansprechwahrscheinlichkeiten wurde in den Abschnitten 3 und 4 beschrieben. Die Zählraten Z_P, Z_U, Z_H wurden aus den Meßdaten ermittelt. Dafür sind der Zähleruntergrund (Status ohne Radiator) und der zeitunabhängige Untergrund gemessen worden. Der letztere wurde aus dem Zeitbereich abgeleitet, in dem aufgrund der kurzen Laufzeiten keine Neutronenereignisse vorkamen (Bereich vor dem Gammapeak).

Um eine mögliche langzeitige Änderung des Neutronenflusses experimentell zu eliminieren, wurde der Status mit und ohne Radiatorfolie in einem Zyklus von etwa 3 Stunden periodisch ausgewechselt. Zur Ansteuerung der Wechselautomatik wurden die Spalttereignisse des ersten vom Neutronenstrahl durchflossenen Gasszintillations-Uranspaltzählers verwendet. Dies war möglich, da die Transmission des Detektors sehr hoch ($>>99,99\%$) war, die Flußdepression durch die Folie also vernachlässigt werden konnte. Für die Ermittlung von Z_H war dann ein genauer Abgleich auf gleiche Neutronenstrahlung während der Zyklen mit und ohne Radiator sehr wichtig, da sonst mögliche Untergrundfehler auftreten.

6. KORREKTUREN UND FEHLERABSCHÄTZUNG

6.1 Korrekturen

Zur Berechnung der Spaltquerschnittsverhältnisse bzw. der absoluten Spaltquerschnitte von ^{239}Pu und ^{240}Pu mußte für verschiedene Effekte korrigiert werden. Bei den Spaltquerschnittsverhältnissen wurden folgende Korrekturen berechnet.

6.1.1 Isotopenkorrektur

Das zur Herstellung der Spaltfolien verwendete Material war zwar jeweils in dem untersuchten Isotop hochangereichert, enthielt aber nicht vernachlässigbare Mengen anderer Isotope in der Größenordnung von einigen Prozent (Tab. 1). Für die wichtigsten Verunreinigungen wurde nach der in Abschn. 5.3 beschriebenen Methode korrigiert. Die dazu notwendigen Spaltquerschnittsverhältnisse $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{239}\text{Pu})$, $\sigma_f(^{238}\text{U})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ sowie $\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{240}\text{Pu})$ wurden entweder früheren eigenen Bestimmungen dieser Größen oder den Evaluationen von Hunter /34/ entnommen. Die Fehler der für diese Korrekturen verwendeten Spaltquerschnittsverhältnisse wird auf 4 % geschätzt. Das gibt zusammen einen resultierenden Fehler, der für beiden Verhältnisse unterhalb von 0,2 % liegt.

6.1.2 Die Anisotropiekorrekturen

Die Anisotropiekorrekturen setzen sich aus zwei Anteilen zusammen:

- 1) den Korrekturen für die anisotrope Winkelverteilung der Spaltfragmente im Schwerpunktsystem und
- 2) den Korrekturen, die sich aufgrund des Impulsübertrags der Neutronen auf den spaltenden Zwischenkern ergeben.

Wie Simmons und Henkel /21/ gezeigt haben, ist die Winkelverteilung der Spaltprodukte im Schwerpunktsystem im MeV-Bereich nicht mehr isotrop. Die Anisotropie ändert sich nicht nur von Kern zu Kern, sondern auch als Funktion der Anregungsenergie des Zwischenkerns und damit als Funktion der Neutronen-Einschußenergie. Durch den Effekt der Anisotropie wird die Ansprechwahrscheinlichkeit des Spaltzählers ϵ_{SP} entsprechend modifiziert.

Dieser Effekt wurde mit dem bereits genannten Programm (Abschnitt 3.1.4) auf der Basis der Meßwerte von Simmons und Henkel berechnet. Er betrug für die Einzelzähler maximal 2,5 %, hob sich bei der Bestimmung der Spaltquerschnittsverhältnisse jedoch weitgehend wieder heraus. Bei einer Unsicherheit der Anisotropiemessung von 10-15 % bleibt der Fehler aufgrund dieser Korrektur kleiner als 0,4 %.

Ein weiterer Korrektoreffekt und damit eine Energieänderung der Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_{SP} ergibt sich aufgrund der vom Neutron übertragenen Rückstoßenergie auf den spaltenden Zwischenkern. Diese nimmt kontinuierlich mit wachsender Neutronenenergie zu. Aufgrund des Effektes kommt man zu einer wachsenden Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_{SP} der Spaltkammer in Vorwärtsrichtung und zu einer reduzierten Ansprechwahrscheinlichkeit für die Spaltkammer in Rückwärtsrichtung. Diese Effekte konnten mit einem zusätzlichen, im Rahmen dieser Arbeit erstellten Programm berechnet werden. Die Eingabedaten für das Programm enthalten die jeweiligen Schichtdicken der Spaltmaterialien, der Trägerfolien und des Bäckingsmaterials sowie die Reichweiten und Energieverluste der Spaltfragmente in den Substanzen. Die Ergebnisse der individuellen Rechnungen werden zum Schluß über den gesamten Bereich der leichten bzw. schweren Spaltfragmente gemittelt. Die Rechnung ergab eine maximale Korrektur von 15 % für ^{235}U und von 4 % für die wesentlich dünneren Pu-Spaltfolien bei 20 MeV Neutronenenergie. Eine Abschätzung der Genauigkeit der Berechnung der Korrektur ergab einen Fehler von ± 5 %. Daraus resultiert ein Fehler des Endergebnisses, welcher zwischen 0,075 - 2,0 % liegt.

Bei der Bestimmung der Spaltquerschnittsverhältnisse ist die hier beschriebene Korrektur von untergeordneter Bedeutung, da der Effekt sowohl für Plutonium als auch für Uran weitgehend der gleiche ist und sich bei der Verhältnisbildung weitgehend kompensiert.

6.1.3 Streukorrekturen

Das Ergebnis der Messung kann durch Neutronen verfälscht werden, die vor Auslösung der Spaltung am Kollimator oder Teilen des Detektors gestreut werden. Diese Streukorrekturen wurden mit Hilfe eines Monte-Carlo-Programms berechnet. Die entsprechenden Streuquerschnitte wurden, soweit sie nicht früher schon im IAK bestimmt waren, der Kerndatenbibliothek Saclay

(CCDN) entnommen. Bei der Rechnung wurden nur Einfach-Streueffekte berücksichtigt, für nicht elastisch gestreute Neutronen wurde als Emissionsspektrum ein Verdampfungsspektrum angenommen. Insgesamt werden 1,5 % der Spalt Ereignisse durch gestreute Neutronen ausgelöst. Der Einfluß durch Streuneutronen von entfernten Objekten (wie z.B. von der Targethalterung, den Kollimatoren in der Bunkerwand etc.) war vernachlässigbar gering ($< 0,01$ %). Der Hauptanteil (ca. 99 %) kann von der Streuung am Füllgas des Spaltdetektors (Ar-N₂-Gemisch). Die Korrekturen sind am größten im Bereich der Ar-N₂-Resonanzen bei niedriger Energie (1,5 - 0,3 %). Es wurde abgeschätzt, daß die Genauigkeit der Korrekturrechnung besser als 20 % ist. Daraus ergibt sich ein resultierender Fehler für die Genauigkeit des Spaltquerschnitts von $\leq 0,3$ %.

6.1.4 Untergrundkorrekturen

Aus den Flugzeitspektren in Abb. 13 ersieht man, daß der zeitunabhängige Untergrund, der sich aus den Kanalinhalten vor dem Gammapeak ergibt, im Bereich zwischen 1-20 MeV jeweils kleiner als 1,5 % ist. Ausnahmen findet man nur bei sehr niedrigen und ganz hohen Energien, wo der Untergrundanteil auf 5 % ansteigt. Eine Messung des zeitunabhängigen Untergrunds erfolgte durch Vergleich der Resonanzbestimmungen von O und C für verschiedene Probendicken. Solche Messungen ergaben, daß eine zeitabhängige Komponente des Untergrunds überall kleiner als 0,5 % ist. Der resultierende Fehler, der durch die Untergrundmessung verursacht wird, liegt für die Einzelwirkungsquerschnitte im Energiebereich zwischen 0,5 - 30 MeV bei ~ 1 %. Sein Einfluß kompensiert sich weitgehend bei der Berechnung der Spaltquerschnittsverhältnisse, kommt aber bei den Absolutbestimmungen voll zum Tragen.

6.1.5 Totzeitkorrektur

Alle hier beschriebenen Spaltexperimente wurden mit totalen Zählraten zwischen 0,5 und 2 kHz durchgeführt. Die Zählratenverluste bei dieser Wiederholungsfrequenz und typischen Impulslängen von ca. 10-15 nsec betragen einige Promill. Die resultierenden Fehler durch diese Korrektur

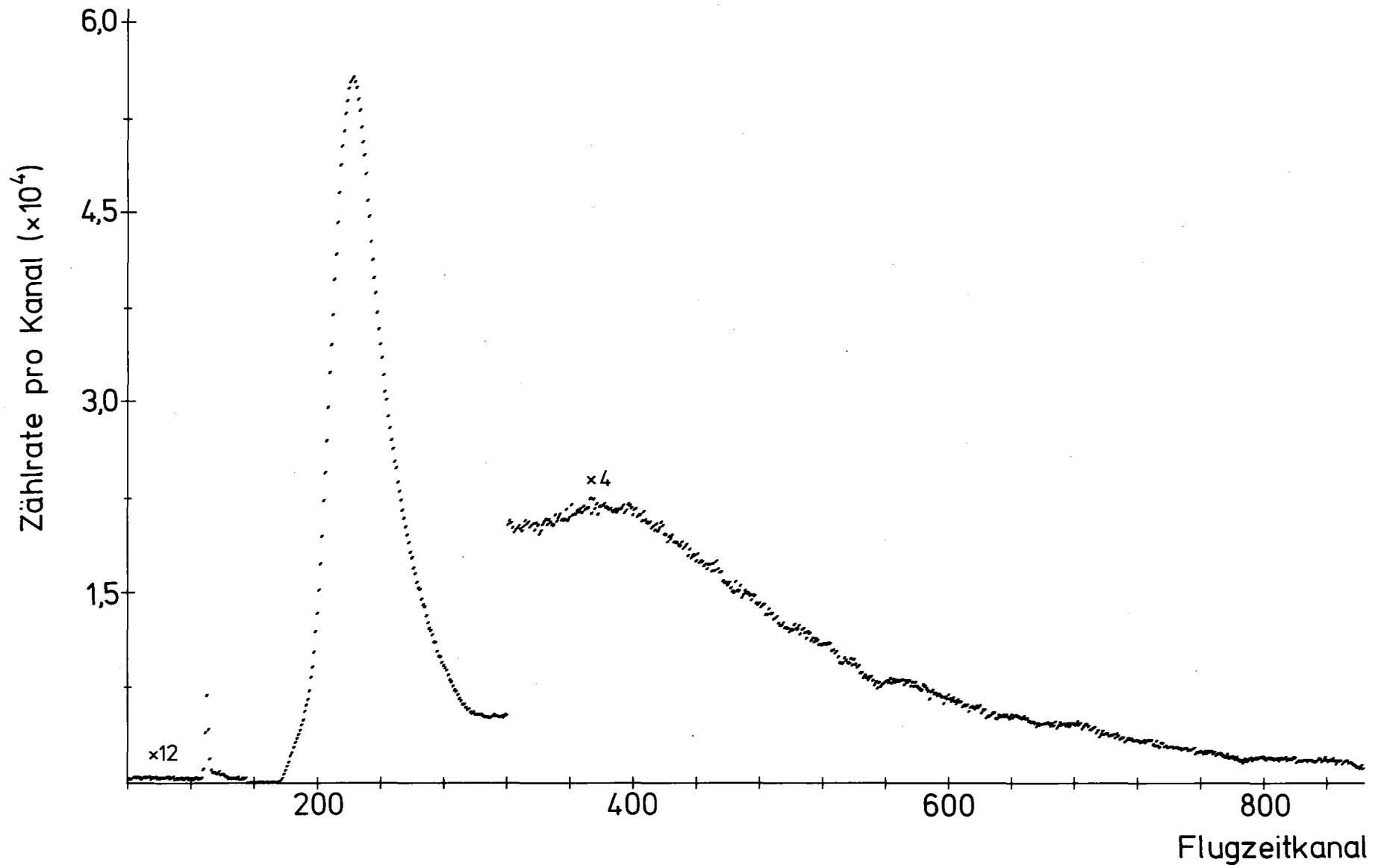


Abb. 13. Flugzeitspektrum des ^{239}Pu -Spaltdetektorzählers

sind vernachlässigbar und wurden daher nicht berücksichtigt.

6.2 Gesamtfehler der Spaltquerschnittsverhältnisse

Zur Abschätzung des Gesamtfehlers der Verhältnismessungen müssen neben den durch die Korrekturen bedingten Fehlern noch Fehler für die Massenbestimmung und die statistischen Fehler berücksichtigt werden. Die statistischen Fehler steigen für $\sigma_{239\text{Pu}}/\sigma_{235\text{U}}$ zwischen 1-20 MeV mit abnehmender Neutronenenergie von 0,5 auf 1,3 % an. Zwischen 1 und 0,5 MeV vergrößert sich der statistische Fehler auf 1,4 %. Im Falle von $\sigma_{240\text{Pu}}/\sigma_{235\text{U}}$ sind die statistischen Fehler etwas höher, da hier jeweils nur eine einzige Spaltfolie verwendet werden konnte. Zwischen 1-20 MeV beträgt der Fehler 0,6 % und 1,4 % weitere Anstieg im Bereich von 0,5-1 MeV beträgt maximal 1,5 % bei 0,5 MeV.

Bezüglich des Fehlers der Massenbestimmung wird auf Abschnitt 3.2 verwiesen, in dem die von dem Hersteller durchgeführten Messungen beschrieben sind. Für die genannten Methoden wird die Genauigkeit der Massenbestimmung mit ± 1 % für alle Spaltfolien angegeben. Die Zusammenfassung der oben genannten Einzelfehler sind in Tab. 2 und 3 wiedergegeben.

Es muß hier darauf hingewiesen werden, daß das Spaltquerschnittsverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{235}\text{U}$ bei 14 MeV normiert ist. Das Experiment lieferte für ^{240}Pu eine Energieabhängigkeit, die gut mit den Ergebnissen anderer Laboratorien übereinstimmt /41/. Der Absolutwert aber lag um ca. 30 % höher. Andererseits betrug die Abweichung des Spaltquerschnitts von ^{235}U in diesem Experiment gegenüber anderen Arbeiten (50,51/ nur ca. 3 %. Dies war ein guter Prüfstein für die Neutronenflußmessung und die Korrekturen. Als einzige Unsicherheit verbleibt dann die nicht von uns bestimmte Massenbelegung des Plutoniumspaltmaterials. Wegen der kurzen Lebensdauer der ^{240}Pu -Spaltfolie war eine nachträgliche, destruktive Analyse nicht mehr möglich. Da ein Fehler von 30 % bei den Messungen der anderen Autoren unwahrscheinlich ist, haben wir unsere Meßdaten bei 14 MeV normiert. Der Normierungswert (1,035 barn) wurde als Mittelwert von White /47/ und Frehaut /59/ bei dieser Energie gemessener Spaltquerschnitte gebildet.

6.3 Gesamtfehler der absoluten Spaltquerschnitte

Zum Gesamtfehler der absoluten Spaltquerschnitte trägt neben dem im vorhergehenden Abschnitt genannten Beiträgen noch der Gesamtfehler der Flußmessung bei. Hinzu kommt, daß der Fehler für die Bestimmung der Ansprechwahrscheinlichkeit der Spaltzähler voll zum Tragen kommt und sich nicht, wie bei den Spaltquerschnittsverhältnissen weitgehend kompensiert. Er beträgt für ^{239}Pu im gesamten Bereich 1,6 % und für ^{240}Pu etwa 1,3 %, da die verwendete ^{240}Pu -Spaltfolie dünner als die ^{239}Pu -Spaltfolie war. Daraus ergibt sich eine Genauigkeit der Absolutmessung, die für beide Isotope praktisch gleich ist. Sie beträgt zwischen 2 und 17 MeV 3,6 %. Zwischen 1 und 2 MeV steigt der Fehler auf 3,9 %, zwischen 18 und 20 MeV auf 4 % an (vgl. Tab. 3).

E_n (MeV)	1-2	2-4	4-6	6-17	17-20
$\sigma_{n,p}$	1,4	1,4	1,4	1,4	1,4
H-Atome	0,7	0,7	0,7	0,7	0,7
Protonenverluste im Radiator	0,7	0,8	0,8	-	-
Schwellenwertbestimmung	1,4	0,5	0,5	0,5	1,8
Extrapolation von ϵ_2 auf ϵ_1 u. ϵ_3	0,8	0,7	1,8	0,8	1,8
Statistischer Fehler	0,8	0,6	0,6	1,3	1,2
Flußbestimmungsfehler %	2,5	2,1	2,7	2,3	3,3

Tabelle 2 Fehler der Flußmessung

E_n (MeV)	1-2	2-4	4-6	6-17	17-20
Ansprechwahrscheinlichkeiten					
der Spaltdetektoren					
a) ^{235}U	1,8	1,8	1,8	1,8	1,8
b) ^{239}Pu	1,6	1,6	1,6	1,6	1,6
c) ^{240}Pu	1,3	1,3	1,3	1,3	1,3
Anisotropie der Spalt-					
fragmenteverteilung					
	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4
n-Streuung	0,3	0,3	0,3	0,3	0,3
Untergrundkorrektur	2	1	1	1	1
Massenbestimmung	1	1	1	1	1
Statistische Fehler					
a) ^{235}U	0,9	0,7	0,5	0,4	0,3
b) ^{239}Pu	1,0	0,9	0,7	0,6	0,4
c) ^{240}Pu	1,1	1,0	0,9	0,8	0,5
Gesamtfehler (%)					
$\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$	2,2	2,1	1,9	1,9	1,8
$\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$	2,3	2,1	2,0	2,0	1,8
$\sigma_f(^{239}\text{Pu})$	3,9	3,2	3,4	3,2	4,0
$\sigma_f(^{240}\text{Pu})$	3,8	3,1	3,5	3,2	3,9

Tabelle 3 Fehler der Spaltquerschnittsbestimmung

7. DARSTELLUNG DER MESSERGEBNISSE

Abb. 14-18 zeigen die Spaltquerschnittsverhältnisse $\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ und $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ bzw. die gemessenen absoluten Spaltquerschnitte von ^{239}Pu , ^{240}Pu und ^{235}U im Neutronenenergiebereich 0,5 - 20 MeV.

Einen Überblick über die numerischen Werte dieser Messung liefern die Tabellen 4-8. Die absoluten Spaltquerschnitte wurden durch eine verbesserte Meßtechnik relativ zum Wasserstoffstreuquerschnitt gemessen und stellen gegenüber früheren Arbeiten, wie im nächsten Abschnitt gezeigt wird, erstmals eine geschlossene Bestimmung des Energieverlaufs von σ_f zwischen 1-20 MeV dar. Der mittlere Fehler liegt bei den absoluten Spaltquerschnitten zwischen 3,0 - 3,9 %, bei den Spaltquerschnittsverhältnissen zwischen 1,8 und 2,4 %. Eine weitere Verbesserung der angeblichen Meßgenauigkeit erscheint zur Zeit nur mit einem entscheidend verbesserten Meßverfahren zur Flußbestimmung sowie mit einer erhöhten Spalt-detektoransprechwahrscheinlichkeit möglich.

E_n (MeV)	$\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$	Gesamtfehler (%)	E_n (MeV)	$\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$	Gesamtfehler (%)
20,89	1,15	1,8	8,98	1,22	1,9
20,45	1,15	1,8	8,86	1,23	1,9
20,02	1,15	1,8	8,73	1,23	1,9
19,60	1,15	1,8	8,62	1,22	1,9
19,20	1,15	1,8	8,50	1,22	1,9
18,81	1,16	1,8	8,38	1,22	1,9
18,43	1,16	1,8	8,27	1,23	1,9
18,07	1,16	1,8	8,16	1,23	1,9
17,71	1,14	1,8	8,05	1,22	1,9
17,36	1,14	1,8	7,95	1,24	1,9
17,03	1,13	1,8	7,84	1,22	1,9
16,70	1,13	1,9	7,74	1,23	1,9
16,39	1,12	1,9	7,64	1,23	1,9
16,08	1,12	1,9	7,55	1,23	1,9
15,78	1,11	1,9	7,45	1,24	2,0
15,49	1,10	1,9	7,36	1,25	2,0
15,21	1,10	1,9	7,26	1,25	2,0
14,93	1,09	1,9	7,17	1,24	2,0
14,67	1,08	1,9	7,08	1,25	2,0
14,41	1,08	1,9	7,00	1,26	2,0
14,15	1,08	1,9	6,91	1,27	2,0
13,91	1,10	1,9	6,83	1,29	2,0
13,67	1,10	1,9	6,75	1,29	2,0
13,43	1,11	1,9	6,66	1,31	2,0
13,20	1,14	1,9	6,58	1,31	2,0
12,98	1,14	1,9	6,51	1,33	2,0
12,77	1,15	1,9	6,43	1,35	2,0
12,55	1,18	1,9	6,35	1,38	2,0
12,35	1,20	1,9	6,28	1,39	2,0
12,15	1,21	1,9	6,21	1,42	2,0
11,95	1,22	1,9	6,14	1,44	2,0
11,76	1,23	1,9	6,07	1,46	2,0
11,57	1,24	1,9	5,93	1,51	1,9
11,39	1,25	1,9	5,73	1,56	1,9
11,21	1,25	1,9	5,55	1,57	1,9
11,04	1,26	1,9	5,37	1,56	1,9
10,87	1,25	1,9	5,20	1,54	1,9
10,71	1,25	1,9	5,04	1,54	1,9
10,54	1,26	1,9	4,88	1,53	1,9
10,38	1,26	1,9	4,73	1,53	1,9
10,23	1,26	1,9	4,59	1,51	1,9
10,08	1,24	1,9	4,46	1,51	1,9
9,93	1,24	1,9	4,33	1,50	1,9
9,79	1,24	1,9	4,21	1,50	1,9
9,64	1,26	1,9	4,09	1,51	1,9
9,51	1,24	1,9	3,98	1,50	2,1
9,37	1,24	1,9	3,87	1,51	2,1
9,24	1,23	1,9	3,76	1,50	2,1
9,11	1,23	1,9	3,66	1,50	2,1

Tabelle 4

E_n (MeV)	$\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$	Gesamtfehler (%)	E_n (MeV)	$\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$	Gesamtfehler (%)
3,57	1,51	2,1	1,28	1,50	2,2
3,48	1,50	2,1	1,26	1,48	2,2
3,39	1,50	2,1	1,24	1,47	2,2
3,30	1,49	2,1	1,22	1,48	2,2
3,22	1,51	2,1	1,20	1,45	2,2
3,14	1,50	2,1	1,18	1,44	2,2
3,06	1,49	2,1	1,16	1,44	2,2
2,99	1,49	2,1	1,15	1,43	2,2
2,92	1,49	2,1	1,13	1,41	2,2
2,85	1,50	2,1	1,11	1,40	2,2
2,79	1,49	2,1	1,10	1,42	2,2
2,72	1,47	2,1	1,08	1,41	2,2
2,66	1,47	2,1	1,07	1,43	2,2
2,60	1,48	2,1	1,05	1,41	2,2
2,54	1,49	2,1	1,04	1,38	2,2
2,49	1,50	2,1	1,02	1,38	2,2
2,43	1,49	2,1	1,01	1,39	2,2
2,38	1,50	2,1	0,99	1,37	2,2
2,33	1,50	2,1	0,97	1,39	2,1
2,28	1,49	2,1	0,94	1,37	2,1
2,24	1,49	2,1	0,92	1,37	2,1
2,19	1,49	2,1	0,90	1,41	2,2
2,14	1,49	2,1	0,88	1,44	2,2
2,10	1,50	2,1	0,86	1,42	2,2
2,06	1,49	2,1	0,85	1,43	2,2
2,02	1,48	2,1	0,83	1,46	2,2
1,98	1,49	2,1	0,81	1,44	2,2
1,94	1,47	2,1	0,79	1,48	2,2
1,90	1,50	2,1	0,78	1,46	2,2
1,87	1,50	2,1	0,76	1,46	2,2
1,83	1,50	2,1	0,75	1,45	2,2
1,80	1,51	2,1	0,73	1,43	2,2
1,77	1,51	2,1	0,72	1,41	2,2
1,73	1,50	2,1	0,70	1,40	2,2
1,70	1,51	2,1	0,69	1,40	2,2
1,67	1,51	2,1	0,68	1,38	2,2
1,64	1,48	2,1	0,67	1,37	2,2
1,61	1,50	2,1	0,65	1,38	2,2
1,58	1,49	2,1	0,64	1,38	2,2
1,56	1,49	2,1	0,63	1,36	2,2
1,53	1,50	2,1	0,62	1,38	2,2
1,50	1,49	2,1	0,61	1,39	2,2
1,48	1,50	2,1	0,60	1,35	2,2
1,45	1,50	2,1	0,59	1,31	2,2
1,43	1,52	2,1	0,57	1,32	2,2
1,41	1,53	2,1	0,56	1,32	2,2
1,38	1,53	2,2	0,56	1,33	2,2
1,36	1,51	2,2	0,55	1,30	2,3
1,34	1,51	2,2	0,54	1,31	2,3
1,32	1,52	2,2	0,53	1,34	2,3
1,30	1,50	2,2	0,52	1,35	2,3
			0,51	1,35	2,3
			0,50	1,31	2,3

Tab. 4 (Forts.)

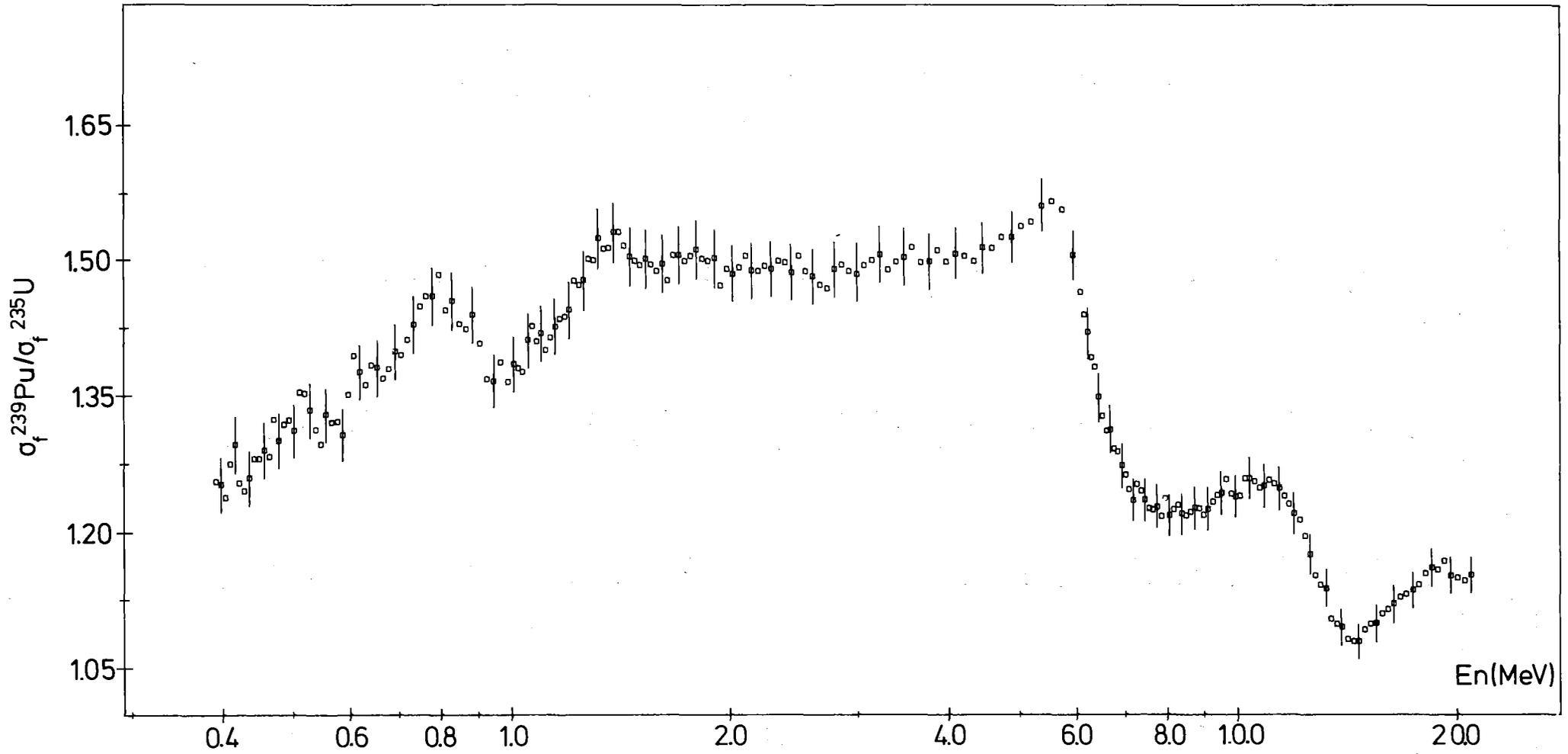


Abb. 14 Spaltquerschnittsverhältnis von $^{239}\text{Pu}/^{235}\text{U}$

E_n (MeV)	$\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$	Gesamtfehler (%)	E_n (MeV)	$\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$	Gesamtfehler (%)
21,20	1,09	1,8	8,87	1,23	2,0
20,75	1,10	1,8	8,75	1,22	2,0
20,31	1,10	1,8	8,63	1,21	2,0
19,89	1,11	1,8	8,52	1,22	2,0
19,49	1,11	1,8	8,40	1,23	2,0
19,09	1,11	1,8	8,29	1,23	2,0
18,71	1,11	1,8	8,18	1,23	2,1
18,33	1,12	1,8	8,07	1,22	2,1
17,97	1,11	1,8	7,97	1,24	2,1
17,62	1,10	1,8	7,87	1,23	2,1
17,28	1,09	1,8	7,77	1,22	2,1
16,95	1,09	1,9	7,67	1,22	2,1
16,63	1,09	1,9	7,57	1,24	2,1
16,32	1,08	1,9	7,47	1,28	2,1
16,02	1,07	1,9	7,38	1,20	2,1
15,72	1,07	1,9	7,29	1,24	2,1
15,44	1,06	1,9	7,20	1,27	2,1
15,16	1,09	1,9	7,11	1,29	2,1
14,89	1,06	1,9	7,02	1,28	2,1
14,63	1,05	1,9	6,85	1,28	2,0
14,37	1,03	1,9	6,61	1,29	2,0
14,12	1,04	1,9	6,38	1,31	2,0
13,87	1,03	1,9	6,16	1,36	2,0
13,64	1,03	1,9	5,96	1,39	2,0
13,41	1,04	1,9	5,76	1,49	2,0
13,18	1,05	1,9	5,57	1,46	2,0
12,96	1,07	1,9	5,40	1,44	2,0
12,75	1,09	1,9	5,23	1,41	2,0
12,54	1,12	1,9	5,06	1,42	2,0
12,34	1,15	1,9	4,91	1,40	2,0
12,14	1,17	1,9	4,76	1,40	2,0
11,94	1,19	1,9	4,62	1,39	2,0
11,75	1,21	2,0	4,49	1,39	2,0
11,57	1,21	2,0	4,36	1,35	2,0
11,39	1,21	2,0	4,24	1,41	2,0
11,21	1,22	2,0	4,12	1,36	2,0
11,04	1,21	2,0	4,00	1,35	2,0
10,87	1,23	2,0	3,90	1,36	2,1
10,71	1,23	2,0	3,79	1,37	2,1
10,55	1,23	2,0	3,69	1,38	2,1
10,39	1,25	2,0	3,60	1,40	2,1
10,24	1,26	2,0	3,50	1,38	2,1
10,09	1,24	2,0	3,41	1,36	2,1
9,94	1,24	2,0	3,33	1,38	2,1
9,80	1,24	2,0	3,25	1,39	2,1
9,66	1,23	2,0	3,17	1,36	2,1
9,52	1,23	2,0	3,09	1,35	2,1
9,38	1,23	2,0	3,02	1,37	2,1
9,25	1,21	2,0	2,95	1,39	2,1
9,12	1,23	2,0	2,85	1,38	2,0
9,00	1,22	2,0	2,75	1,35	2,0

Tabelle 5

E_n (MeV)	$\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$	Gesamtfehler (%)
2,64	1,33	2,0
2,55	1,35	2,0
2,46	1,31	2,0
2,37	1,33	2,0
2,29	1,30	2,0
2,21	1,30	2,0
2,14	1,32	2,0
2,07	1,31	2,1
2,00	1,29	2,1
1,94	1,33	2,4
1,77	1,29	2,4
1,78	1,29	2,3
1,67	1,28	2,3
1,57	1,28	2,3
1,47	1,27	2,3
1,38	1,25	2,3
1,31	2,26	2,3
1,23	1,27	2,3
1,17	1,25	2,3
1,11	1,26	2,3
1,05	1,27	2,3
1,00	1,23	2,4
0,94	1,21	2,3
0,87	1,17	2,3
0,81	1,06	2,4
0,75	0,94	2,4
0,71	0,84	2,4
0,66	0,79	2,4
0,62	0,69	2,4
0,58	0,61	2,5
0,55	0,52	2,6
0,52	0,45	2,6
0,49	0,36	2,8

Tab. 5 (Forts.)

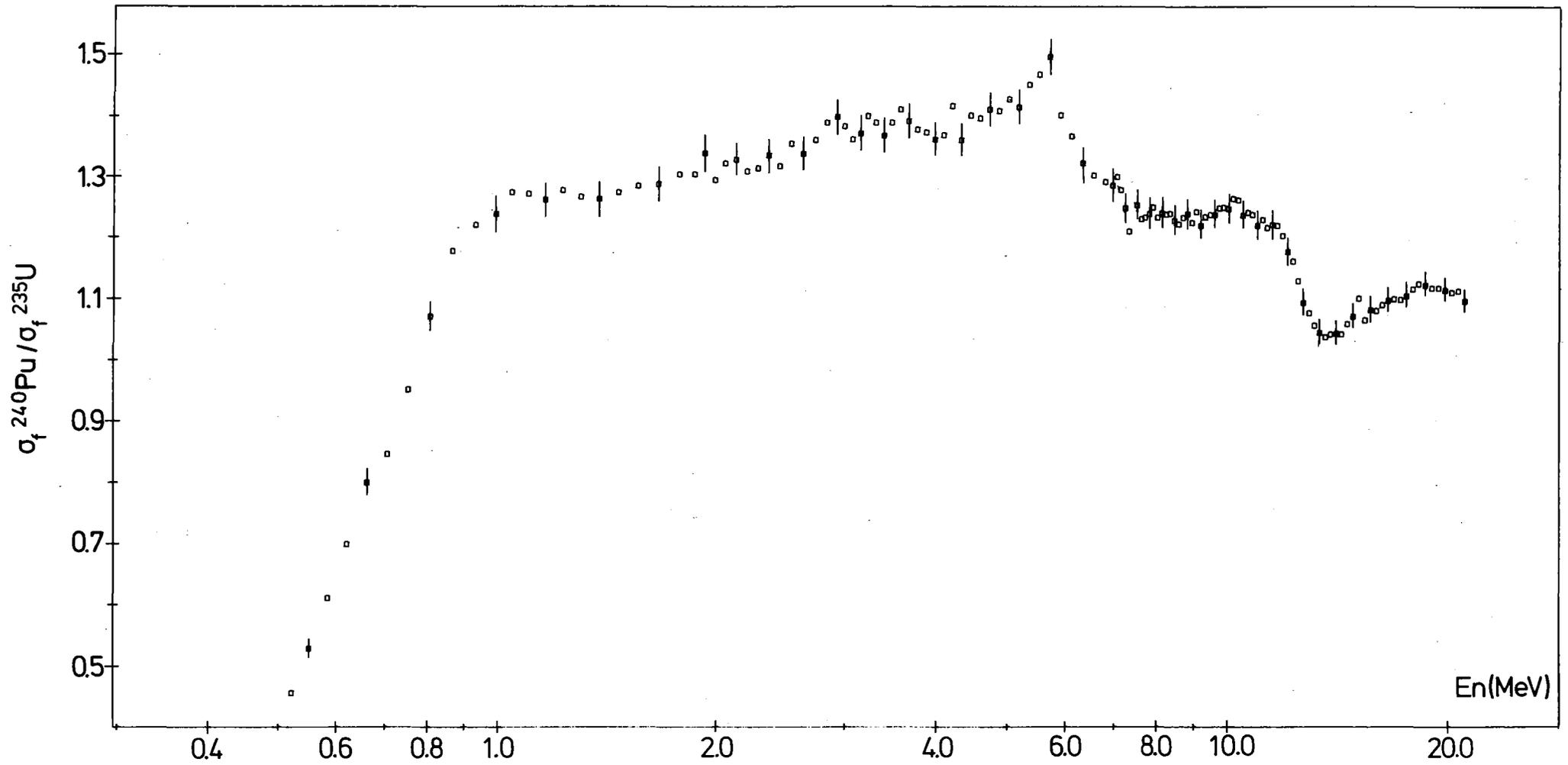


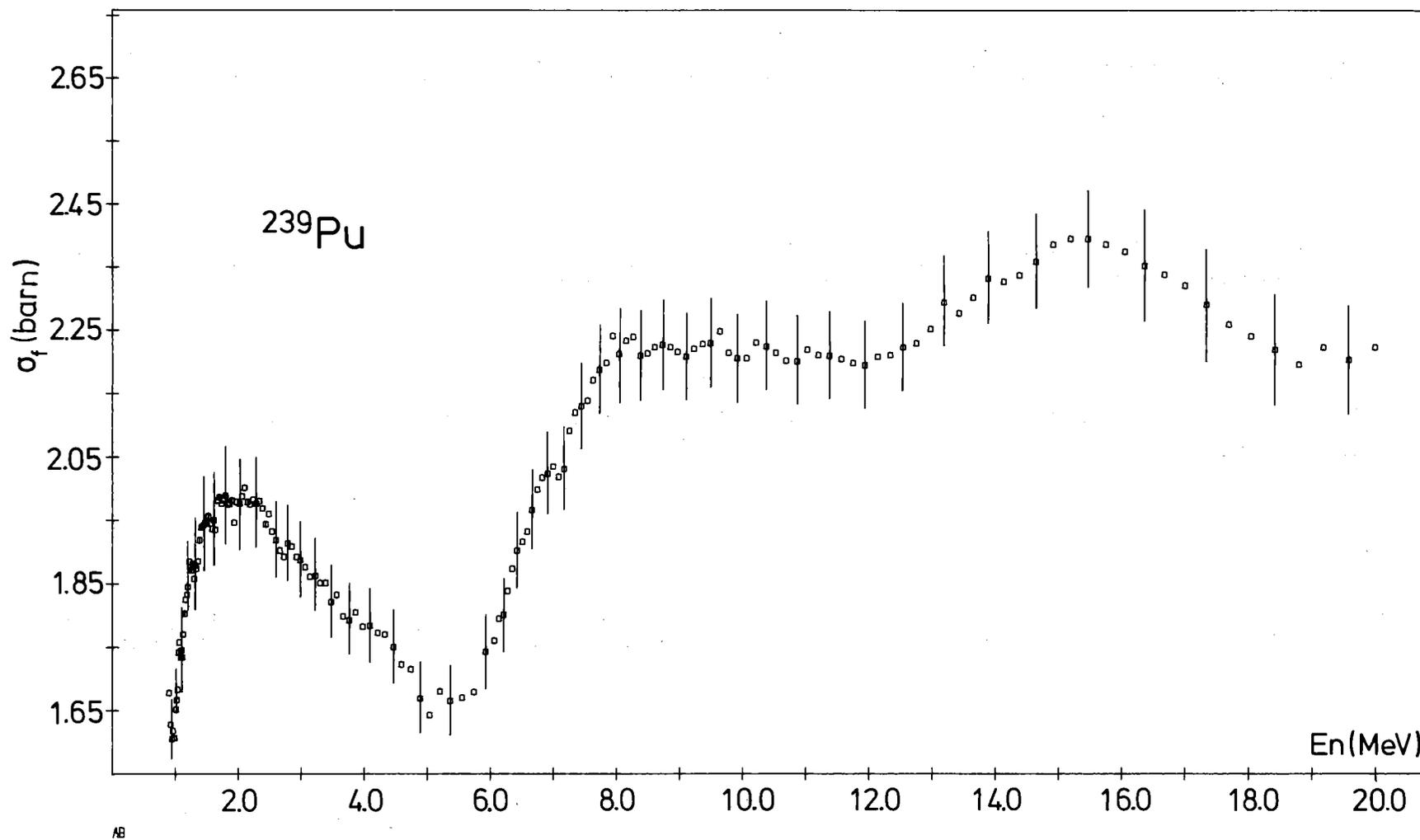
Abb. 15. Spaltquerschnittsverhältnis von $^{240}\text{Pu}/^{235}\text{U}$

E_n (MeV)	σ_f (^{239}Pu) barn	Gesamtfehler (%)	E_n (MeV)	σ_f (^{239}Pu) barn	Gesamtfehler (%)
20,89	2,24	4,0	8,98	2,22	3,2
20,45	2,22	4,0	8,86	2,22	3,2
20,02	2,22	4,0	8,73	2,23	3,2
19,60	2,20	4,0	8,62	2,22	3,2
19,20	2,22	4,0	8,50	2,21	3,2
18,81	2,20	4,0	8,38	2,21	3,2
18,43	2,22	4,0	8,27	2,24	3,2
18,07	2,24	4,0	8,16	2,23	3,2
17,71	2,26	4,0	8,05	2,21	3,2
17,36	2,29	3,9	7,95	2,24	3,2
17,03	2,32	3,8	7,84	2,20	3,2
16,70	2,34	3,6	7,74	2,19	3,2
16,39	2,35	3,5	7,64	2,17	3,2
16,08	2,38	3,2	7,55	2,14	3,2
15,78	2,39	3,2	7,45	2,13	3,2
15,49	2,40	3,2	7,36	2,12	3,2
15,21	2,39	3,2	7,26	2,09	3,2
14,93	2,39	3,2	7,17	2,03	3,2
14,67	2,39	3,2	7,08	2,02	3,2
14,41	2,34	3,2	7,00	2,04	3,2
14,15	2,33	3,2	6,91	2,02	3,2
13,91	2,33	3,2	6,83	2,02	3,2
13,67	2,30	3,2	6,75	2,00	3,2
13,43	2,28	3,2	6,66	1,97	3,2
13,20	2,30	3,2	6,58	1,93	3,2
12,98	2,25	3,2	6,51	1,92	3,2
12,77	2,23	3,2	6,43	1,90	3,2
12,55	2,22	3,2	6,35	1,87	3,2
12,35	2,21	3,2	6,28	1,84	3,2
12,15	2,21	3,2	6,21	1,80	3,2
11,95	2,20	3,2	6,14	1,79	3,2
11,76	2,20	3,2	6,07	1,76	3,2
11,57	2,21	3,2	5,93	1,74	3,4
11,39	2,21	3,2	5,73	1,68	3,4
11,21	2,21	3,2	5,55	1,67	3,4
11,04	2,22	3,2	5,37	1,67	3,4
10,87	2,20	3,2	4,20	1,68	3,4
10,71	2,20	3,2	5,04	1,64	3,4
10,54	2,21	3,2	4,88	1,67	3,4
10,38	2,23	3,2	4,73	1,72	3,4
10,23	2,23	3,2	4,59	1,72	3,4
10,08	2,21	3,2	4,46	1,75	3,4
9,93	2,21	3,2	4,33	1,77	3,4
9,79	2,22	3,2	4,21	1,77	3,4
9,64	2,25	3,2	4,09	1,78	3,4
9,51	2,23	3,2	3,98	1,78	3,2
9,37	2,23	3,2	3,87	1,81	3,2
9,24	2,22	3,2	3,76	1,79	3,2
9,11	2,21	3,2	3,66	1,80	3,2

Tabelle 6

E_n (MeV)	$\sigma_f(^{239}\text{Pu})$ barn	Gesamtfehler (%)	E_n (MeV)	$\sigma_f(^{239}\text{Pu})$ barn	Gesamtfehler (%)
3,57	1,83	3,2	1,32	1,88	3,9
3,48	1,82	3,2	1,30	1,86	3,9
3,39	1,85	3,2	1,28	1,88	3,9
3,30	1,85	3,2	1,26	1,87	3,9
3,22	1,86	3,2	1,24	1,88	3,9
3,14	1,86	3,2	1,22	1,89	3,9
3,06	1,88	3,2	1,20	1,84	3,9
2,99	1,89	3,2	1,18	1,83	3,9
2,92	1,89	3,2	1,16	1,82	3,9
2,85	1,91	3,2	1,15	1,80	3,9
2,79	1,91	3,2	1,13	1,77	3,9
2,72	1,89	3,2	1,11	1,73	3,9
2,66	1,90	3,2	1,10	1,74	3,9
2,60	1,92	3,2	1,08	1,73	3,9
2,54	1,93	3,2	1,07	1,76	3,9
2,49	1,96	3,2	1,06	1,74	3,9
2,43	1,94	3,3	1,04	1,68	3,9
2,38	1,97	3,4	1,02	1,67	3,9
2,33	1,98	3,3	1,01	1,65	3,9
2,28	1,98	3,5	0,99	1,61	3,9
2,24	1,98	3,6			
2,19	1,98	3,7			
2,14	1,98	3,8			
2,10	2,00	3,7			
2,06	1,99	3,8			
2,02	1,98	3,9			
1,98	1,98	3,9			
1,94	1,95	3,9			
1,90	1,98	3,9			
1,87	1,97	3,9			
1,83	1,98	3,9			
1,80	1,99	3,9			
1,77	1,98	3,9			
1,73	1,98	3,9			
1,70	1,99	3,9			
1,67	1,98	3,9			
1,64	1,94	3,9			
1,61	1,95	3,9			
1,58	1,94	3,9			
1,56	1,94	3,9			
1,53	1,96	3,9			
1,50	1,94	3,9			
1,48	1,95	3,9			
1,45	1,94	3,9			
1,43	1,94	3,9			
1,41	1,94	3,9			
1,38	1,92	3,9			
1,36	1,88	3,9			
1,38	1,87	3,9			
1,36	1,88	3,9			
1,34	1,87	3,9			

Tab. 6 (Forts.)



AB

Abb. 16. Spaltquerschnitt von ^{239}Pu

E_n (MeV)	σ_f (^{240}Pu) barn	Gesamtfehler (%)	E_n (MeV)	σ_f (^{240}Pu) barn	Gesamtfehler (%)
21,20	2,12	3,9	8,87	2,23	3,2
20,75	2,14	3,9	8,75	2,22	3,2
20,31	2,13	3,9	8,63	2,21	3,2
19,89	2,13	3,9	8,52	2,22	3,2
19,49	2,11	3,9	8,40	2,23	3,2
19,09	2,11	3,9	8,29	2,23	3,2
18,71	2,11	3,9	8,18	2,24	3,2
18,33	2,14	3,9	8,07	2,22	3,2
17,97	2,16	3,9	7,97	2,25	3,2
17,62	2,18	3,9	7,87	2,22	3,2
17,28	2,20	3,9	7,77	2,19	3,2
16,95	2,24	3,8	7,67	2,17	3,2
16,63	2,26	3,7	7,57	2,18	3,2
16,32	2,28	3,5	7,47	2,21	3,2
16,02	2,29	3,6	7,38	2,05	3,3
15,72	2,31	3,4	7,29	2,08	3,3
15,44	2,30	3,4	7,20	2,09	3,3
15,16	2,38	3,3	7,11	2,10	3,3
14,89	2,32	3,2	7,02	2,06	3,3
14,63	2,29	3,2	6,85	2,02	3,3
14,37	2,23	3,2	6,61	1,91	3,3
14,12	2,22	3,2	6,38	1,81	3,3
13,87	2,19	3,2	6,16	1,70	3,3
13,64	2,15	3,2	5,96	1,62	3,6
13,41	2,13	3,2	5,76	1,62	3,7
13,18	2,11	3,2	5,57	1,56	3,5
12,96	2,10	3,2	5,40	1,54	3,5
12,75	2,09	3,2	5,23	1,53	3,5
12,54	2,11	3,2	5,06	1,52	3,5
12,34	2,13	3,2	4,91	1,52	3,5
12,14	2,12	3,2	4,76	1,57	3,5
11,94	2,15	3,2	4,62	1,57	3,5
11,75	2,14	3,2	4,49	1,60	3,5
11,57	2,15	3,2	4,36	1,59	3,5
11,39	2,14	3,2	4,24	1,66	3,5
11,21	2,15	3,2	4,12	1,61	3,5
11,04	2,14	3,2	4,00	1,61	3,5
10,87	2,16	3,2	3,90	1,63	3,4
10,71	2,17	3,2	3,79	1,64	3,4
10,55	2,16	3,2	3,69	1,66	3,3
10,39	2,21	3,2	3,60	1,69	3,2
10,24	2,22	3,2	3,50	1,67	3,1
10,09	2,20	3,2	3,41	1,67	3,1
9,94	2,21	3,2	3,33	1,71	3,1
9,80	2,21	3,2	3,25	1,72	3,1
9,66	2,19	3,2	3,17	1,69	3,1
9,52	2,20	3,2	3,09	1,69	3,1
9,38	2,20	3,2	3,02	1,74	3,1
9,25	2,18	3,2	2,95	1,77	3,1
9,12	2,22	3,2	2,85	1,76	3,1
9,00	2,20	3,2	2,75	1,74	3,1

Tabelle 7

E_n (MeV)	$\sigma_f(^{240}\text{Pu})$ barn	Gesamtfehler (%)
2,64	1,72	3,1
2,55	1,75	3,1
2,46	1,71	3,1
2,37	1,74	3,1
2,29	1,73	3,1
2,21	1,73	3,1
2,14	1,75	3,1
2,07	1,75	3,2
2,00	1,71	3,4
1,94	1,76	3,5
1,88	1,71	3,5
1,78	1,70	3,7
1,67	1,68	3,8
1,57	1,66	3,8
1,47	1,64	3,8
1,38	1,57	3,8
1,31	1,55	3,8
1,23	1,62	3,8
1,17	1,59	3,8
1,11	1,56	3,8
1,05	1,56	3,8
1,00	1,45	3,8

Tabelle 7 (Fortsetzung)

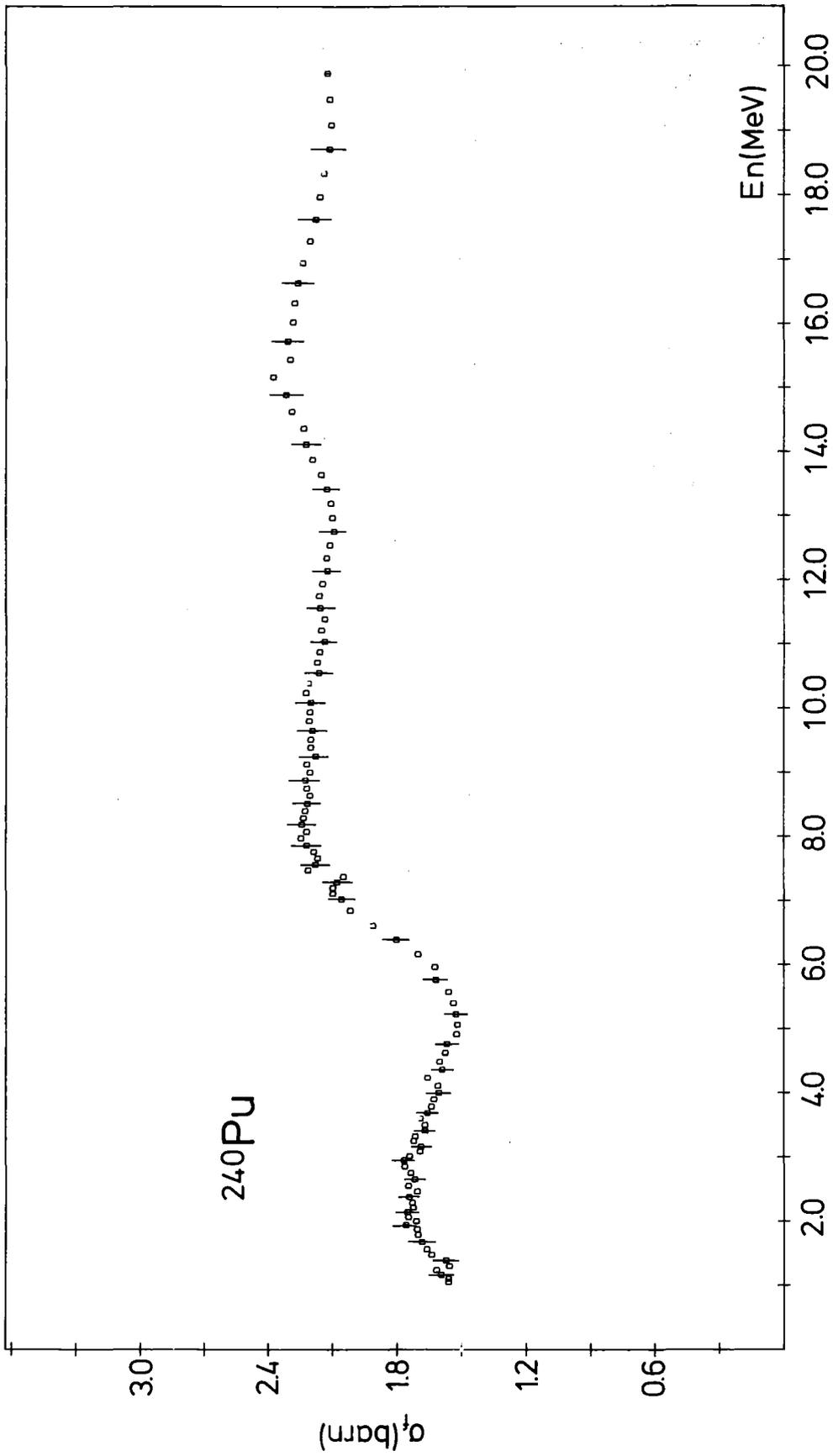


Abb. 17. Spaltquerschnitt von ^{240}Pu

E_n (MeV)	$\sigma_f(^{235}\text{U})$ barn	Gesamtfehler (%)	E_n (MeV)	$\sigma_f(^{235}\text{U})$ barn	Gesamtfehler (%)
21,20	1,95	4,1	8,75	1,81	3,3
20,75	1,94	4,1	8,63	1,82	3,3
20,31	1,94	4,1	8,52	1,82	3,3
19,89	1,93	4,1	8,40	1,81	3,3
19,49	1,91	4,1	8,29	1,82	3,3
19,09	1,90	4,1	8,18	1,82	3,3
19,71	1,90	4,1	8,07	1,81	3,3
1,833	1,92	4,1	7,97	1,81	3,3
17,97	1,95	4,1	7,87	1,81	3,3
17,62	1,99	4,1	7,77	1,78	3,3
17,28	2,02	4,1	7,67	1,77	3,3
16,95	2,05	4,0	7,57	1,75	3,3
16,63	2,08	3,8	7,47	1,73	3,3
16,32	2,10	3,9	7,38	1,71	3,3
16,02	2,13	3,6	7,29	1,68	3,3
15,72	2,15	3,7	7,20	1,65	3,3
15,44	21,8	3,4	7,11	1,63	3,3
15,16	2,18	3,4	7,02	1,61	3,3
14,89	2,18	3,3	6,85	1,57	3,3
14,63	2,18	3,3	6,61	1,48	3,4
14,37	2,16	3,3	6,38	1,37	3,4
14,12	2,15	3,3	6,16	1,25	3,5
13,87	2,12	3,3	5,96	1,17	3,4
13,64	2,09	3,3	5,76	1,09	3,6
13,41	2,05	3,3	5,57	1,07	3,6
13,18	2,01	3,3	5,40	1,07	3,6
12,96	1,97	3,3	5,23	1,09	3,6
12,75	1,93	3,3	5,06	1,07	3,6
12,54	1,89	3,3	4,91	1,09	3,6
12,34	1,85	3,3	4,76	1,12	3,6
12,14	1,82	3,3	4,62	1,14	3,6
11,94	1,80	3,3	4,49	1,15	3,6
11,75	1,78	3,3	4,36	1,18	3,6
11,57	1,78	3,3	4,24	1,18	3,6
11,39	1,77	3,3	4,12	1,18	3,6
11,21	1,76	3,3	4,00	1,19	3,6
11,04	1,76	3,3	3,90	1,19	3,5
10,87	1,76	3,3	3,79	1,20	3,4
10,71	1,76	3,3	3,69	1,20	3,4
10,55	1,76	3,3	3,60	1,21	3,3
10,39	1,77	3,3	3,50	1,21	3,2
10,24	1,77	3,3	3,41	1,23	3,2
10,09	1,78	3,3	3,33	1,24	3,2
9,94	1,78	3,3	3,25	1,24	3,2
9,80	1,78	3,3	3,17	1,24	3,2
9,66	1,79	3,3	3,09	1,25	3,2
9,52	1,79	3,3	3,02	1,27	3,2
9,38	1,80	3,3	2,95	1,27	3,2
9,25	1,80	3,3	2,85	1,28	3,2
9,12	1,80	3,3	2,75	1,9	3,2
9,00	1,81	3,3	2,64	1,29	3,2
8,87	1,81	3,3	2,55	1,30	3,2

Tabelle 8

E_n (MeV)	$\sigma_f(^{235}\text{U})$ barn	Gesamtfehler (%)
2,46	1,31	3,2
2,37	1,32	3,2
2,29	1,33	3,2
2,21	1,33	3,5
2,14	1,33	3,6
2,07	1,33	3,7
2,00	1,33	3,9
1,94	1,32	3,8
1,88	1,32	3,9
1,78	1,32	3,9
1,67	1,32	3,9
1,57	1,30	3,9
1,47	1,30	3,9
1,38	1,25	3,9
1,31	1,24	3,9
1,23	1,27	3,9
1,17	1,27	3,9
1,11	1,23	3,9
1,05	1,23	3,9
1,00	1,18	3,9

Tabelle 8 (Fortsetzung)

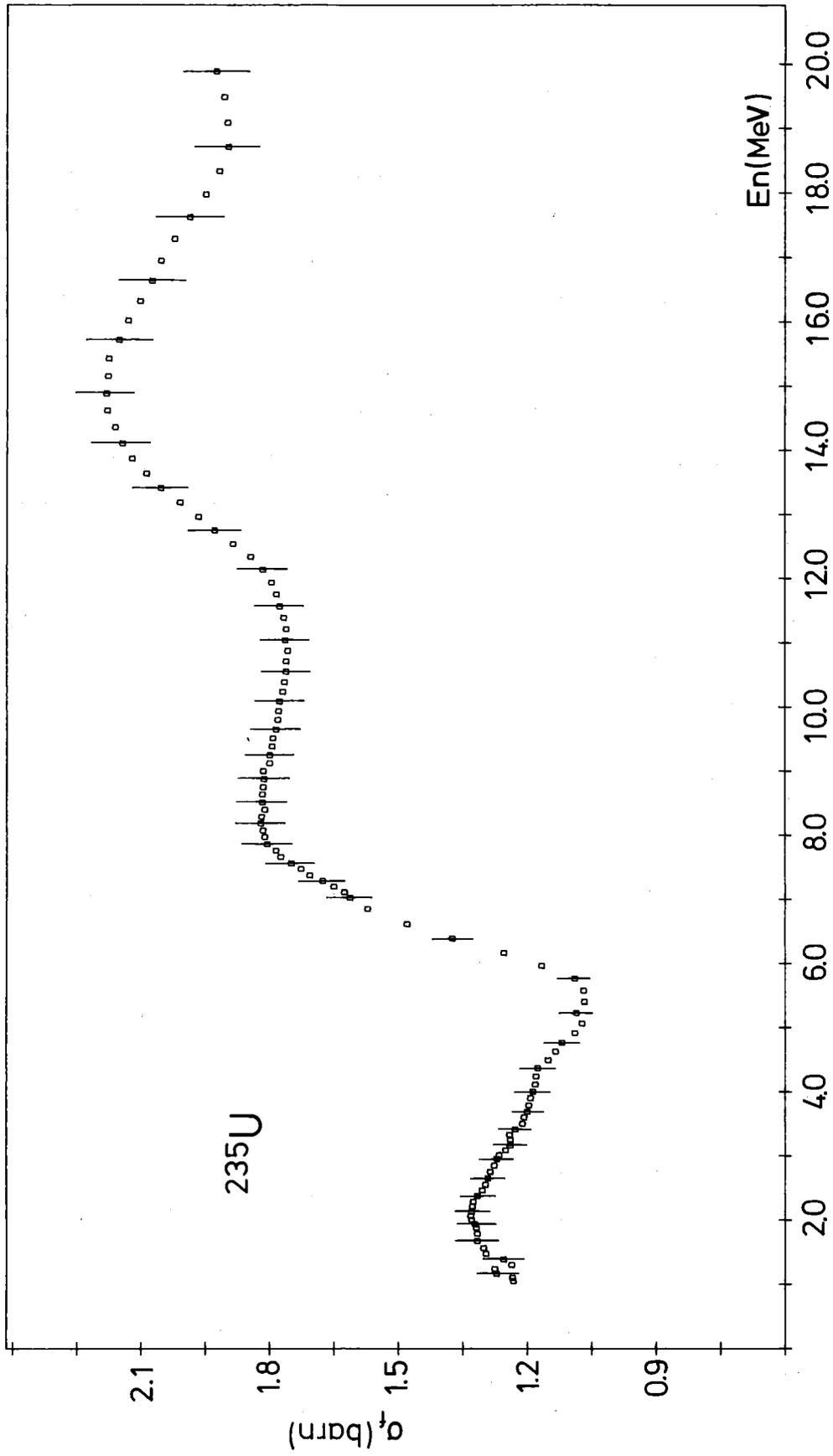


Abb. 18. Spaltquerschnitt von ^{235}U

8. DISKUSSION

8.1 Vergleich der Messungen mit Ergebnissen anderer Autoren

Wegen Schwierigkeiten bei der Neutronenflußbestimmung ist die Messung von absoluten Querschnitten problematisch. Bei relativen Messungen entfällt dieses Problem, weil die beiden Materialien von demselben Neutronenstrahl bestrahlt werden. Als Standard für relative Messungen ist der Spaltquerschnitt von ^{235}U von internationalen Gremien als Referenz empfohlen worden, da er von mehreren Laboratorien /36,39,50/ mit einer Genauigkeit von besser als 3 % gemessen wurde. Dies ermöglicht bei einer Querschnittsmessung eines Isotops relativ zu ^{235}U eine indirekte Bestimmung des Spaltquerschnitts. Daher wurden in dieser Arbeit die Spaltquerschnitte der beiden Plutoniumisotope zunächst relativ zu $\sigma_f(^{235}\text{U})$ gemessen.

Im folgenden soll ein Vergleich mit den wichtigsten z.Zt. zur Verfügung stehenden Daten durchgeführt werden und eine kritische Wertung der entsprechenden Diskrepanz versucht werden.

8.1.1 Das Verhältnis $\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$

Pfletschinger und Käppeler /40/ haben das Querschnittsverhältnis im Energiebereich 0,005 - 1 MeV mit einer Genauigkeit von 1,5 - 3 % gemessen. Zur Neutronenerzeugung wurde die Reaktion $^7\text{Li} (p,n)^7\text{Be}$ verwendet. Dabei wurden Protonenimpulse eines 3 MeV gepulsten Van de Graaff mit einer Wiederholfrequenz von 1 MHz auf metallische Li-Targets geschossen. Zum Nachweis der Spalt Ereignisse wurden zwei identische Gasszintillationskammern verwendet, wobei in einer die ^{235}U und in der anderen die ^{239}Pu -Folie einmontiert war. Die beiden Kammern wurden symmetrisch im Neutronenstrahl angeordnet. Korrekturen wurden für die Spontanspaltung, die Alpha-Zufalls-koinzidenzen und die im Raum gestreuten Neutronen durchgeführt.

Die Korrekturen für (n, γ)-Prozesse wurden mit einer Leerkammer nach Entfernung der Spaltfolien experimentell bestimmt und berücksichtigt. Eine zusätzliche Isotopen-(99,45 % ^{235}U , 96,32 % ^{239}Pu) und Totzeit-Korrektur wurde durchgeführt. Die Rechnung der Ansprechwahrscheinlichkeit der Spaltkammer stützte sich auf die Methode von Rossi und Staub /35/. Bei einer Bestimmung der Spaltfragment-Verluste unterhalb der elektronischen Nachweisschwelle

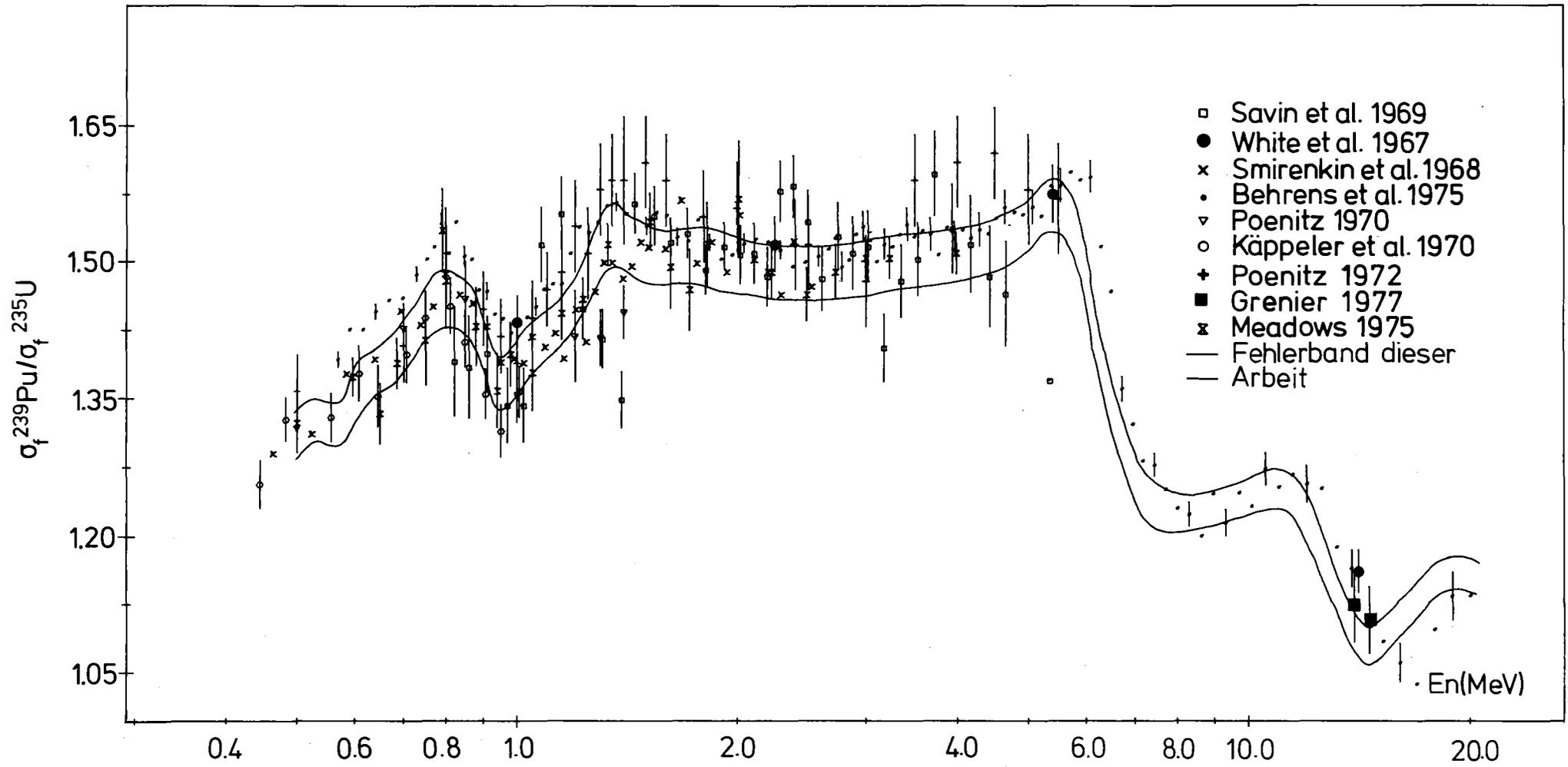


Abb. 19. Fehlerbandverlauf des Spaltquerschnittsverhältnisses von $^{239}\text{Pu}/^{235}\text{U}$ und Vergleich mit Messungen anderer Autoren.

(15 MeV) ergab die Rechnung, daß 6,7 % der Spaltfragmente in der ^{239}Pu -Folie und 7,5 % in der etwas dickeren Uranfolie verlorengehen. Ein Vergleich zwischen den beiden Experimenten zeigt, daß die Daten der vorliegenden Arbeit im gesamten Überlappungsbereich zwischen 0,5 - 1 MeV mit den Werten von Käppeler innerhalb von 1 - 1,5 % übereinstimmen. Eine Abweichung von 2 % tritt nur für den Meßpunkt bei 0,95 MeV auf.

Behrens und Carlson /41/ haben das Wirkungsquerschnittsverhältnis im Energiebereich von 0,001 - 30 MeV gemessen. Zur Erzeugung der Neutronen wurden Elektronen mit einer Wiederholfrequenz von 1440 Hz im Livermoore-Elektronen-Linearbeschleuniger beschleunigt und auf ein wassergekühltes Tantal-Target geschossen. Die Bestimmung der Neutronenenergie wurde nach der Flugzeitmethode ausgeführt. Die prompte Gammastrahlung des Target wurde zur Zeiteichung verwendet. Zum Nachweis der Spaltereignisse wurden Ionisationskammern eingesetzt, welche im Neutronenstrahl in einem Abstand von ca. 34,3 m vom Target angeordnet waren. Zur Bestimmung der Spaltquerschnittsverhältnisses wurde die sogenannte Threshold-Methode verwendet, bei der das eine Isotop thermisch spaltbar sein muß, das andere eine Spaltschwelle besitzt.

Bei zwei starken Kernbrennstoffen (wie in diesem Fall) müssen beide jeweils relativ zu ein und demselben schwachen Kernbrennstoff gemessen und anschließend das gewünschte Spaltquerschnittsverhältnis der beiden starken Kernbrennstoffe abgeleitet werden. Bei der genannten Methode braucht man zwar weder das Verhältnis von Nachweiswahrscheinlichkeiten der beiden Spaltkammern noch das Massenbelegungsverhältnis der beiden Spaltfolien. In das Endergebnis gehen aber die Unsicherheiten zweier Verhältnisse und eines Produkts ein.

Ein Vergleich der Daten von Behrens mit denen dieser Arbeit zeigt, daß Unterschiede in der Form der Wirkungsquerschnittskurven bestehen. Während beide Ergebnisse sich im Energiebereich zwischen 2-6 MeV nur um ca. 1 % unterscheiden, vergrößert sich die Abweichung mit fallender Neutronenenergie kontinuierlich und erreicht bei 0,5 MeV ca. 3,5 %. Bei den niedrigeren Energien liegen jedoch alle übrigen Messungen ausnahmslos unterhalb der von Behrens gemessenen Kurven in einem etwa 2 % breiten Band (Abb. 19). Die Daten oberhalb von ca. 6 MeV weisen eine Diskrepanz auf, welche vermutlich auf eine Diskrepanz in der Energieskala zurückzuführen ist. Dies wird besonders deutlich aus den Bereichen bei 6-8 MeV und

12-15 MeV. Da für beide Messungen zur Energiebestimmung die Flugzeitmethode verwendet wird und die Diskrepanz im gesamten Bereich eine konstante Zeitverschiebung widerspiegelt, liegt der Fehler wahrscheinlich in der Bestimmung des absoluten Nullpunkts der Zeitskala. Um einen Fehler für das eigene Experiment auszuschließen, wurden folgende Kontrollen durchgeführt:

1. Es wurde kontrolliert, daß der in den Koinzidenzspektren auftretende Gammapeak mit dem in den Einzelspektren beobachteten übereinstimmt.
2. Über die Analogspektren wurde sichergestellt, daß der Peak in den Koinzidenzspektren durch Photospaltung entsteht.
3. Die Energieskala wurde mit Hilfe der Transmissionsminima bei Stickstoff-, Kohlenstoff- und Sauerstoffresonanzen in den Spaltspektren überprüft. Aufgrund dieser Kontrollmessungen kann eine Unsicherheit von ca. 10 Flugzeitkanälen, wie sie für eine Übereinstimmung mit den LLL-Werten erforderlich wäre, für die eigenen Messungen ausgeschlossen werden.

Poenitz /42/ hat das Wirkungsquerschnittsverhältnis im Energiebereich von 0,13 - 1,4 MeV gemessen. Monoenergetische Neutronen wurden mit einem 3 MeV Van-de-Graaff über die $\text{Li}(p,n)\text{Be}$ -Reaktion und dünnen Targets ($\Delta E=10-20$ keV unterhalb 300 keV und 50-80 keV darüber) erzeugt. Zur Unterdrückung des Untergrundes wurde die Flugzeitmethode verwendet. Die Spaltfolien ($25 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ^{239}Pu , 99,95 % Reinheit und $150 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ^{235}U) wurden in der Mitte einer Gasszintillationsanordnung eingebaut (back-to-back) wodurch diese in zwei gleiche Kammern aufgegliedert worden ist. Damit konnte in dieser Anordnung in einer Kammer nur ^{239}Pu und in der anderen nur ^{235}U Spalt Ereignisse gezählt werden. Zur Identifizierung der Spalt Ereignisse und Unterdrückung des Untergrundes wurde jede Kammer von zwei in Koinzidenz geschalteten Photomultipliern beobachtet. Korrekturen für die Spaltfragmentverluste (1,2 % bei ^{235}U und 0,2 % bei ^{239}Pu) in der Spaltfolie und für die Neutronenstreuung im Folienträger wurden durchgeführt. Die Fehler für die Massen- und Energiebestimmung liegen nach Angabe des Autors bei 1,5 % bzw. 1-2 %. Der statistische Fehler lag bei 1-2 %. In einem weiteren Experiment desselben Autors /43/ wurde das Verhältnis im Energiebereich von 0,5 - 5,4 MeV mit dem Dynamitron-Tandem-Beschleuniger gemessen. In diesem Experiment wurde die Spaltkammer periodisch im Neutronenstrahl um 180° gedreht. Dadurch wurden Korrekturen wie die Anisotropiekorrekturen im Zusammenhang mit dem Neutronenimpulsübertrag auf den Zwischenkern und Korrekturen den Streueffekten im Backing

eliminiert. Korrekturen für die im Raum gestreuten Neutronen und für den Effekt des Auftretens der zweiten Neutronengruppe bei der $\text{Li}(p,n)\text{Be}$ -Reaktion wurden ebenfalls durchgeführt.

Ein Vergleich der Ergebnisse von Poenitz an diesem Experiment zeigt, daß die neuen Daten /43/ im großen und ganzen mit der Form des hier gemessenen Wirkungsquerschnittsverlaufs übereinstimmen, jedoch im Mittel um ca. 3-4 % zu hoch liegen. Aus der entsprechenden Veröffentlichung /43/ geht jedoch nicht hervor, warum die frühere Messung /42/ derselben Autoren im Bereich zwischen 0,9 und 1,5 MeV um ca. 6 % tiefer gelegen hat, während die Daten unterhalb 0,9 MeV seiner jetzigen und früheren Messung innerhalb der Fehlergrenzen übereinstimmen.

Savin /44/ hat das Spaltquerschnittsverhältnis im Energiebereich zwischen 0,82 - 5,35 MeV unter Anwendung der Flugzeitmethode gemessen. Die im Elektronenlinearbeschleuniger erzeugten Neutronen durchfliegen ein evakuiertes Rohr von 35 m und treffen auf die Spaltprobe (24,21 g, 98 % Reinheit ^{239}Pu , 30,7 g, 90 % ^{235}U) die sich im Innern eines 400 l Flüssigkeitsszintillationsdetektors befinden. Eine Spaltung wird durch die assoziierte prompte Gammastrahlung nachgewiesen. Die Auflösung des Systems betrug 1 ns/m. Für die Neutronenenergie höher als 4,5 MeV wurde der Untergrund der Gammastrahlung aus der inelastischen Neutronenstreuung so hoch, daß vermutlich die letzten drei Meßpunkte bereits verfälscht sind /45/.

Zusätzlich findet man im Energiebereich 1,2 - 1,4 MeV ein zweites Wirkungsquerschnittsminimum, welches in allen übrigen Daten nicht beachtet wurde. Im übrigen Energiebereich stimmen die Verhältnisse im Rahmen der Fehlergrenzen mit den Werten dieser Arbeit überein.

Nestrov und Smirenkin /46/ haben das Wirkungsquerschnittsverhältnis im Energiebereich von 0,33 - 2,6 MeV mit einem Fehler kleiner als 2,7 % gemessen. Durch die Reaktion $\text{T}(p,n)$ wurden Neutronen am Van-de-Graaff-Beschleuniger erzeugt. Die ^{235}U - und ^{239}Pu -Folie wurden back-to-back in eine Ionisationskammer eingebaut und im gleichen Neutronenfluß bestrahlt. Es wurde zuerst das Verhältnis der Spaltzählrate gemessen. Zur Normierung

ist der Spaltquerschnitt mit langsamen und schnellen Neutronen gemessen worden. Korrekturen für die Anisotropieverteilung der Spaltfragmente (ca. 1,8 %) und eine isotrope Korrektur (ca. 4 %) wurden durchgeführt. Der Fehler der beiden Korrekturen liegt bei 0,6 % bzw. 0,2 %. Zusätzlich sind 1,4 % als statistischer Fehler und 0,4 % als Fehler für Neutronenstreuung in der Kammer angegeben. Die Messung von Nestrov stimmt im gesamten Energiebereich von 0,5 - 2 MeV gut mit den Daten dieser Arbeit überein. Generell beträgt die Abweichung ca. 1-2 %. Abweichungen bis 4 % gibt es nur für 3 der insgesamt 34 Meßpunkte, die jedoch auf das Basis des statistischen Fehlers verstanden werden können.

White und Warner /47/ haben das Verhältnis bei den Neutronenenergien 1, 2, 25, 4-5 und 14,1 MeV gemessen. Zur Neutronenerzeugung wurden die Reaktionen $T(p,n)$, $D(d,n)$ und $T(d,n)$ ausgenutzt. Der Nachweis der Spaltereignisse erfolgt mit Hilfe von Ionisationsspaltkammern. Korrektur für Zählratenverluste in der Kammer wurden durchgeführt. Die Unsicherheiten für diese Korrektur, die Massenbestimmung und die Statistik ergeben zusammen einen Fehler von 2 %. Ein Vergleich zwischen den beiden Datensätzen zeigt, daß das Verhältnis bei White für die ersten drei Punkte zwischen 1-3 % höher liegt als bei dem Experiment dieser Arbeit. Dies ist noch im Rahmen der angegebenen Fehler zulässig. Bei 14,1 liegt das Verhältnis bei White jedoch ca. 7 % höher und stellt somit eine echte Diskrepanz zwischen den beiden Ergebnissen dar.

Bei den Neutronenenergien 13,9 und 14,6 MeV wurden von Grenier in /48/ Präzisionsmessungen am 4 MeV Van-de-Graaff-Beschleuniger durchgeführt, die noch unveröffentlicht sind, aber während des Interlab-Seminars 1977 vorgetragen wurden. Die Neutronen wurden mit Hilfe der $T(d,n)$ -Reaktion erzeugt. Zum Nachweis der Spaltereignisse diente eine Ionisationskammer. In den sehr sorgfältigen Messungen und Daten-Analysen konnte eine Genauigkeit von ca. 2 % erreicht werden. Ein Vergleich mit den eigenen Messungen zeigt, daß beide Ergebnisse in guter Übereinstimmung sind. Die Messungen von Grenier liefern auch einen guten Hinweis dafür, daß das Wirkungsquerschnittsverhältnis bei ca. 14 MeV wie erwartet wesentlich kleiner ist als das von White gemessene.

Meadows /49/ hat das Spaltquerschnittsverhältnis im Energiebereich von 0,1 - 4 MeV am Argonne Fast Neutron Generator gemessen. Die Neutronen wurden mit Hilfe der Reaktion ${}^7\text{Li} (p,n){}^7\text{Be}$ erzeugt. Die beiden Spaltfolien wurden back-to-back in einer Ionisationskammer eingebaut. Wie bei Poenitz wurde auch hier die Kammer im Neutronenstrahl um 180° gedreht, um den Einfluß der Rückstoßenergie zu kompensieren.

Korrekturen für Untergrund, inelastische Streuung von Neutronen, Isotopenverunreinigungen, für Störreaktionen ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}^+$, ${}^7\text{Li}(p,n){}^3\text{He}$ ${}^4\text{He}$ wurden durchgeführt. Ein Vergleich mit den Daten dieser Arbeit zeigt eine gute Übereinstimmung zwischen beiden Experimenten. In 20 von insgesamt 25 Meßpunkten liegt die Abweichung unter 1 %. In den übrigen 5 Werten steigt die Differenz auf 2-3 %.

8.1.2 Der absolute Spaltquerschnitt von ${}^{239}\text{Pu}$

White und Warner /47/ haben von ihrem gemessenen Spaltquerschnittsverhältnis $\sigma_f({}^{239}\text{Pu})/\sigma_f({}^{235}\text{U})$ den absoluten Spaltquerschnitt von ${}^{239}\text{Pu}$ abgeleitet. Dazu wurden die Spaltquerschnitte von ${}^{235}\text{U}$ bei den Neutronenenergien 1, 2,25, 5,4 und 14,1 MeV zu 1,22, 1,31, 1,02 und 2,17 barn angenommen. Die sich daraus ergebenden Spaltquerschnitte von ${}^{239}\text{Pu}$ sind mit Ausnahme der Werte bei 5,4 und 14,1 MeV in guter Übereinstimmung mit der eigenen Messung (Abb. 20). Bei 5,4 MeV liegt der angenommene ${}^{235}\text{U}$ -Wirkungsquerschnitt bereits niedriger als der im hiesigen Labor gemessene absolute Wert. Das trifft auch für die von Czirr /50/ und Hansen /51/ gemessenen absoluten Spaltquerschnitte von ${}^{235}\text{U}$ bei dieser Energie zu (Abb. 21). Die Werte der beiden Autoren stimmen im Rahmen der Fehler mit dem eigenen Wert überein, liegen aber um ca. 4 % höher als der Wert von White. Nimmt man nun unsere eigenen Werte für ${}^{235}\text{U}$ und das Verhältnis von White, so ergibt sich für den ${}^{239}\text{Pu}$ -Spaltquerschnitt ein Wert, der auf 1 % mit dem unserem übereinstimmt. Dies gilt jedoch nicht für 14,1 MeV, wo bereits das Wirkungsquerschnittsverhältnis nicht mehr übereinstimmt. Die Diskrepanz wird zusätzlich dadurch vergrößert, daß auch noch ein höherer ${}^{235}\text{U}$ -Wirkungsquerschnitt als der hier gemessene zur Normierung verwendet wird.

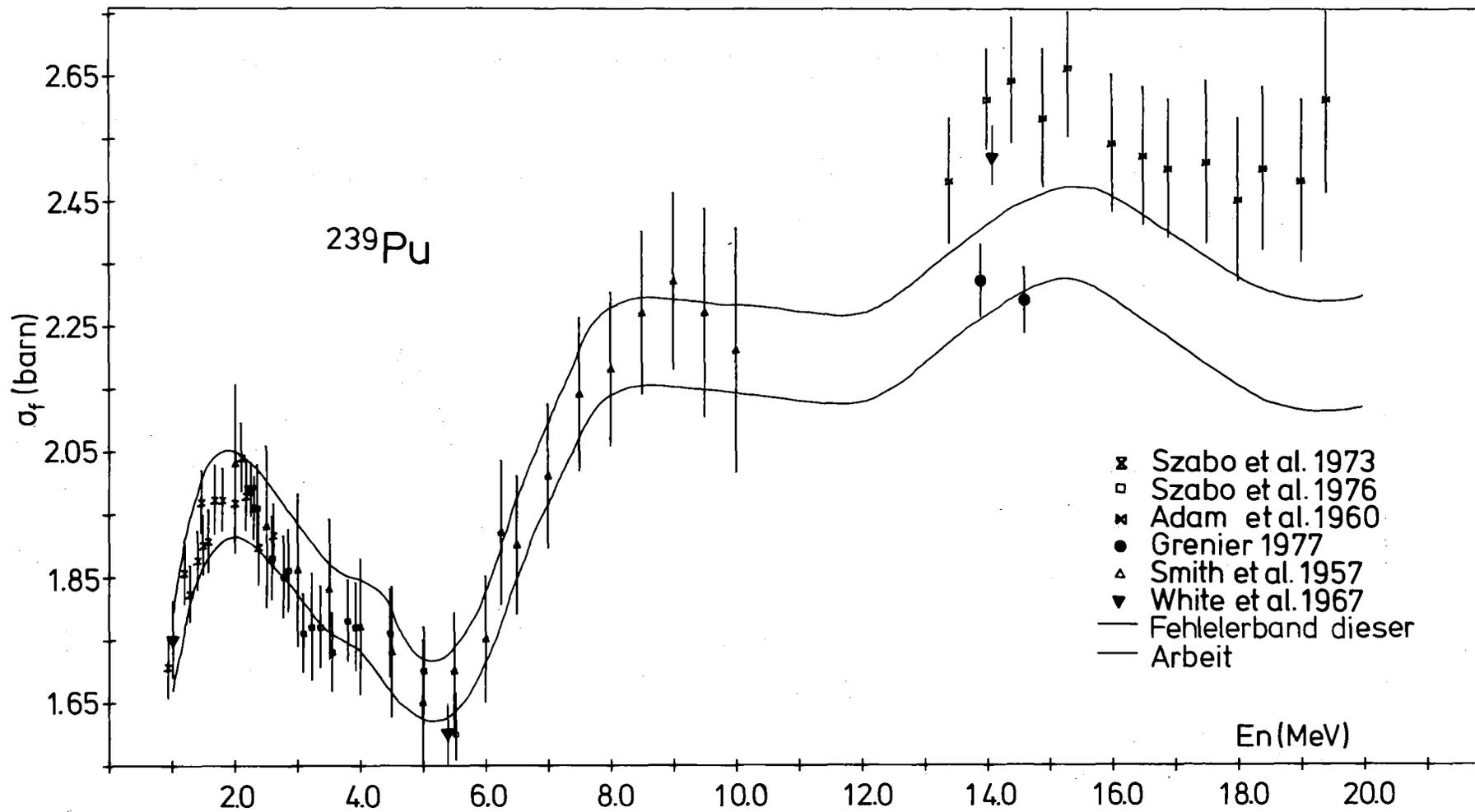


Abb. 20. Fehlerbandverlauf des absoluten Spaltquerschnitts von ^{239}Pu und Vergleich mit Messungen anderer Autoren.

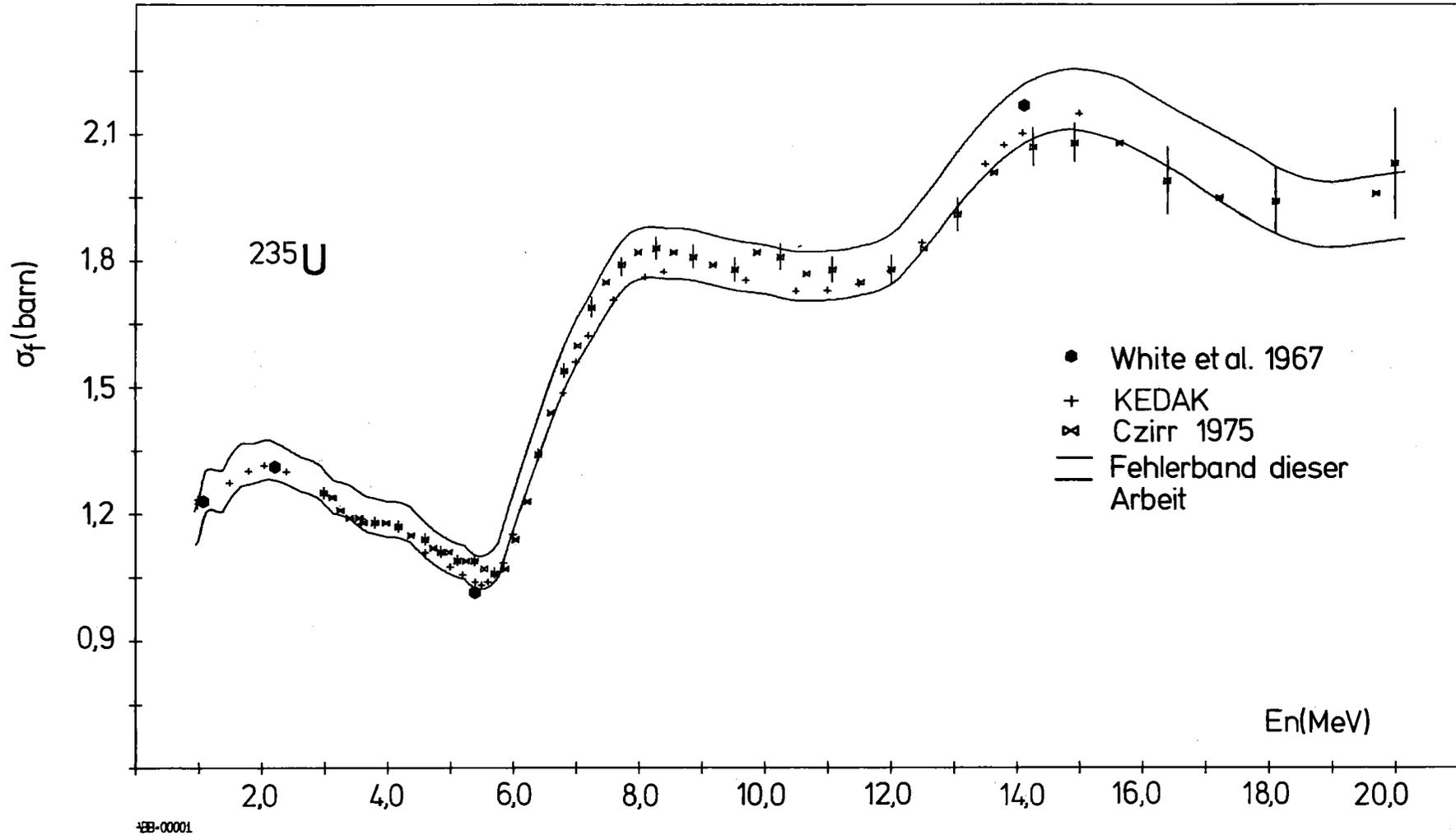


Abb. 21. Fehlerbandverlauf des absoluten Spaltquerschnitts von ^{235}U und Vergleich mit Messungen anderer Autoren.

In zwei Experimenten /52,53/ hat Szabo den absoluten Spaltquerschnitt von ^{239}Pu im Energiebereich von 0,805 - 2,61 MeV und 2,35 - 5,5 MeV gemessen. Die Reaktionen $T(p,n)$ und $d(d,n)^3\text{He}$ wurden ausgenutzt, um monoenergetische Neutronen in den genannten Bereichen an einem Van de Graaff zu erzeugen. Zur Unterdrückung des Untergrundes wurde die Flugzeitmethode verwendet. Die Spaltereignisse wurden mit einer Ionisationskammer nachgewiesen. Zur Neutronenflußbestimmung wurde ein geeichter richtungsabhängiger Flußzähler verwendet. Durch die Methode der assoziierten Teilchen wurden über die Reaktion $T(p,n)^3\text{He}$ (für Neutronenenergien bis 2,2 MeV) und die $T(d,n)^4\text{He}$ (bei 14,8 MeV) Eichungen des Flußzählers durchgeführt. Der Fehler wurde für Neutronenenergien über 2,5 MeV mit 3 % und darunter mit 2,5 % abgegeben. Korrektur für Untergrund, für Störneutronen aus der Reaktion $^{12}\text{C}(d,n)^{13}\text{N}$ (Kohlenstoffträgerfolie) und von an der Kammer elastisch gestreuten Neutronen wurden durchgeführt. Ein Vergleich beider Ergebnisse zeigt eine gute Übereinstimmung in den Energiebereichen 1 - 2,5 MeV und 3,8 - 5 MeV. Im Energiebereich dazwischen liegen die Daten von Szabo um ca. 5 % unter den eigenen Werten. Da die Szabo-Werte im Bereich zwischen 2,5 - 3,8 MeV auch beim gleichzeitig gemessenen Wirkungsquerschnitt von ^{235}U systematisch um 5 % niedriger als alle übrigen Querschnittsdaten/11,36,50,51/liegen, ist zu vermuten, daß hier systematische Fehler unberücksichtigt geblieben sind.

Adam /54/ hat $\sigma_f(^{239}\text{Pu})$ relativ zu $\sigma_f(^{238}\text{U})$ gemessen und den Spaltquerschnitt von $\sigma_f(^{239}\text{Pu})$ mit Hilfe früher selbst absolut gemessener Spaltquerschnitte von ^{238}U berechnet. Dabei wurde $\sigma_f(^{238}\text{U})$ auf den Wert 1,136 bei der Neutronenenergie von 14,0 MeV normiert. Durch Beschuß eines Tritium Gas-targets mit Deuteronen im 6 MeV-Van-de-Graaff wurden Neutronen im Energiebereich zwischen 13,4 - 19,4 MeV erzeugt. Dafür wurden sowohl der Beobachtungswinkel als auch die Deuteronenenergie geändert. Korrekturen für den ^{240}Pu -Anteil in den Spaltfolien (2,1 % ^{240}Pu) und für den zeitabhängigen Untergrund wurden durchgeführt. Für die Flußbestimmung wurde $\sigma_{n,p}$ bei 0° von Ref. /55/ verwendet. Anisotropiekorrekturen für die Spaltfragmente und $\sigma_{n,p}$ wurden vernachlässigt. Ein Vergleich zwischen den Spaltquerschnitten der beiden Experimente zeigt, daß die Daten von Adam um ca. 6-10 % höher liegen als die des eigenen Experiments. Durch Anwendung der Anisotropiekorrektur bei der Messung von Adam wird der Wirkungsquerschnitt zwar verringert, die Größe der Korrektur hängt jedoch stark von den experimentellen Bedingungen ab, die in der entsprechenden Veröffentlichung nicht ausführlich genug angegeben sind.

Ein Vergleich zwischen Pankratov /56/ und Hansen /57/ mit Adam für $\sigma_f(^{238}\text{U})$ zeigt auch, daß die Daten von Adam im Energiebereich von 17,5 - 19,5 MeV um ca. 3-8 % höher liegen als bei den beiden Autoren.

Smith /58/ hat sowohl das Verhältnis $\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{238}\text{U})$ als auch $\sigma_f(^{238}\text{U})$ relativ zu $\sigma(n,p)$ gemessen. Zum Nachweis der Spaltprodukte sind die Spaltfolien jeweils in einer Ionisationskammer eingebaut. Hansen /57/ hat anschließend eine Streukorrektur für $\sigma(^{238}\text{U})$ von Smith durchgeführt und $\sigma_f(^{239}\text{Pu})$ neu berechnet. Für diese Daten wurde ein Fehler von 5,6 - 8,8 % angegeben. Ein Vergleich der Ergebnisse mit den eigenen Daten zeigt eine gute Übereinstimmung in dem ganzen Energiebereich.

Unter denselben Meßbedingungen für $\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ (Abschnitt 8.1.1) hat Grenier auch den absoluten Spaltquerschnitt von ^{239}Pu bei den Neutronenenergien 13,9 und 14,6 MeV gemessen. Die Flußbestimmung geschah mit Hilfe der Methode der assoziierten Teilchen. Diese Ergebnisse zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit den Werten dieser Arbeit. Die Abweichung liegt unterhalb 1,5 %.

8.1.3 Das Spaltquerschnittsverhältnis $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$

Behrens /41/, White /47/ und Savin /44/ haben das Spaltquerschnittsverhältnis $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ mit derselben Meßmethode gemessen, die zur Bestimmung von $\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ verwendet wurde und bereits im Abschnitt 8.1.1. beschrieben ist. Da ^{240}Pu eine Spaltschwelle besitzt, konnte der Spaltquerschnitt mit der Thresholdmethode direkt gemessen werden.

Ein Vergleich zwischen Behrens und den Daten dieses Experiments zeigt eine gute Übereinstimmung im Energiebereich von 0,5 - 6 MeV (weniger als 2 % Abweichung). Bei dem starken Abfall im Bereich von 6,5 MeV und 13,5 MeV nimmt die Abweichung bis auf 6 % zu. Dies führen wir wie beim ^{239}Pu -Experiment auf eine Diskrepanz bei der Energiebestimmung zurück. Nicht erklärt ist damit allerdings die Abweichung im Bereich des Plateaus zwischen 6,5 - 11 MeV, wo die Daten von Behrens um ca. 4 % höher liegen (Abb. 22).

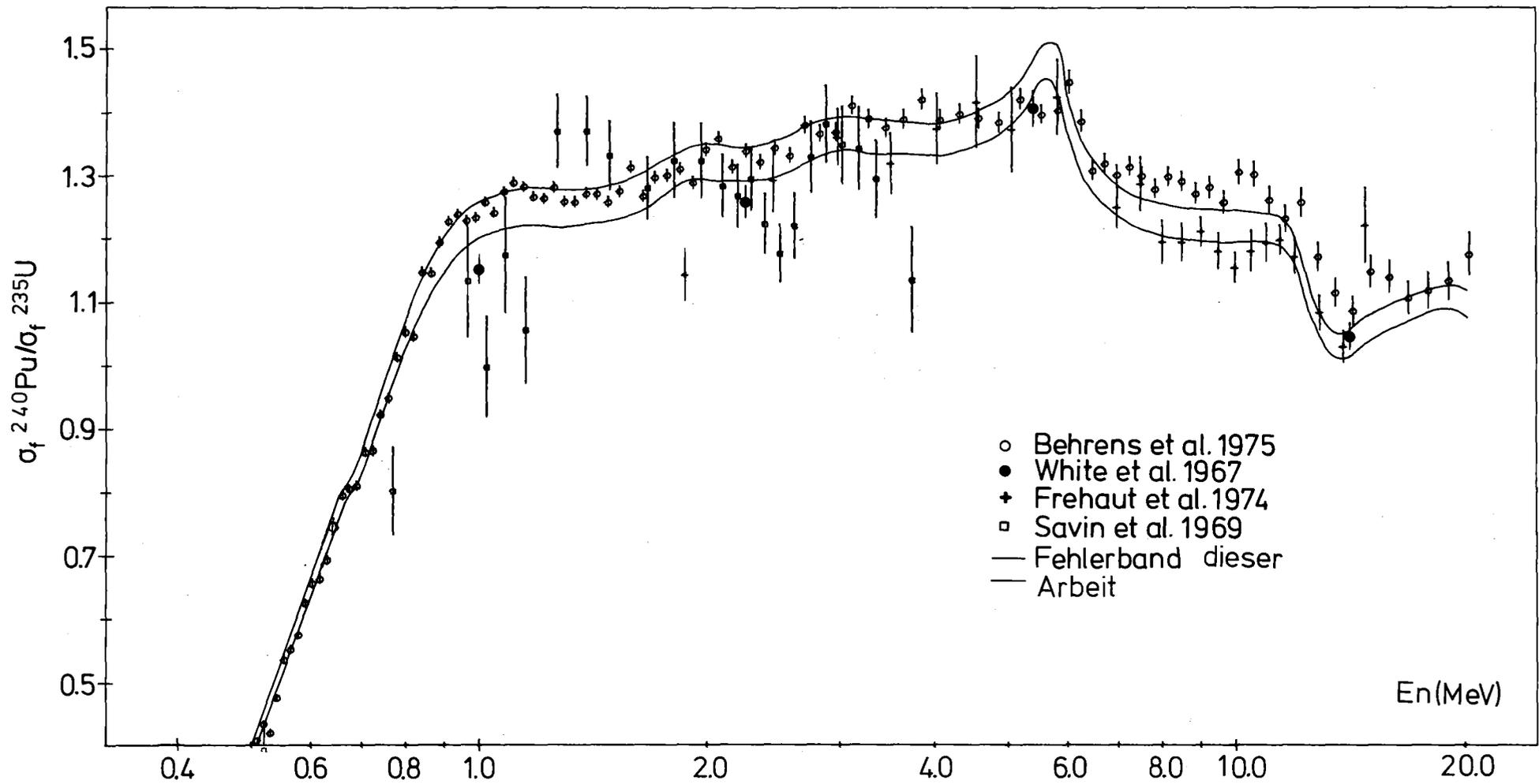


Abb. 22. Fehlerbandverlauf des Spaltquerschnittsverhältnisses von $^{240}\text{Pu}/^{235}\text{U}$ und Vergleich mit Messungen anderer Autoren.

Ein Vergleich mit White und Warner /47/ zeigt, daß die Meßpunkte bei 14,1 und 5,4 MeV in guter Übereinstimmung mit diesem Experiment sind. Bei der Neutronenenergie 2,25 MeV liegt die Abweichung bei ca. 3,5 % und bei 1 MeV bei ca. 6,8 %. Der letzte Meßpunkt liegt auch um ca. 7 % niedriger als bei Behrens /41/, ergibt aber bessere Übereinstimmung mit den Daten von Savin /44/.

Der Vergleich mit Savin zeigt eine große Abweichung im Neutronenenergiebereich von 0,5 - 1,5 MeV. Savins Daten liegen zwischen 4-20 % niedriger als in diesem Experiment. Zusätzlich zeigen diese Daten starke Schwankungen im Energiebereich von 0,9 - 1,25 MeV, die in diesen und Behrens Ergebnissen nicht zu finden sind. Im Energiebereich von 1,5 - 3,35 MeV liegt die Abweichung bei \pm 2-8 %, die im Rahmen der angegebenen Meßfehler auf eine Diskrepanz mit den Messungen dieser Arbeit hinweist.

Frehaut /59/ hat das Verhältnis im Neutronenenergiebereich von 1,87 - 14,79 MeV gemessen. Mit dem 14 MeV Tandem-Van-de-Graaff wurden Neutronen im gesamten Bereich durch die Reaktionen $T(p,n)^3\text{He}$ und $D(d,n)^3\text{He}$ erzeugt. Die Spaltfolien (53 mg, 98,3 % ^{240}Pu) und (30 mg, 98,89 % ^{235}U) wurden in einer Ionisationskammer montiert, welche im Zentrum eines mit Gadolinium beladenen Flüssigkeitsszintillators von 80 cm Durchmesser angeordnet ist. Zur Trennung zwischen spontanen und neutroneninduzierten Spaltungen sowie Unterdrückung des Untergrunds wurde die Flugzeitmethode verwendet. Korrekturen für Untergrund und Totzeit wurden berücksichtigt. Eine gute Übereinstimmung zwischen den beiden Experimenten existiert für insgesamt 18 der von Frehaut gemessenen 20 Meßpunkte mit Ausnahme des ersten und letzten Meßpunktes bei 1,87 und 14,79 MeV, wo die Abweichungen jeweils plötzlich auf \pm 10 % ansteigen. Bemerkenswert ist hier auch die gute Übereinstimmung im Bereich des Abfalls bei 13,5 MeV, weil diese Messung die Richtigkeit der Energieeichung dieser Arbeit unterstreicht.

8.1.4 Der absolute Spaltquerschnitt von ^{240}Pu

Nestrov und Smirenkin /60/ haben den absoluten Spaltquerschnitt von ^{240}Pu im Energiebereich zwischen 0,04 - 4 MeV gemessen. Durch die Reaktion $^3\text{H}(p,n)^3\text{He}$ wurden die Neutronen im 5 MeV Van-de-Graaff erzeugt. Zum Nachweis der Spalt Ereignisse wurde eine Spezial-Ionisationskammer

verwendet, bei der in der ersten Hälfte die Spaltfolien ^{240}Pu (2,5 mg) und in der zweiten ^{239}Pu (4 mg) montiert waren, die damit im selben Neutronenfluß bestrahlt wurden. Der niedrige Druck (120 mm Hg) des Nachweisgases (93 % Argon und 7 % CO_2) in der Kammer bewirkte die gute Trennung zwischen Alpha-Teilchen und Spaltprodukten. Die Massenbelegung der Spaltfolie wurde für ^{239}Pu die Messung der Spaltereignisse bei thermischen Energien, für ^{240}Pu über die Messung der Spontanspaltrate dieses Kerns ermittelt. Zur Berücksichtigung des Spaltquerschnitts von ^{239}Pu wurde ein Mittelwert des von Hughes und Schwartz /61/ und des Hemmendinger /62/ gemessenen absoluten Spaltquerschnitts von $\sigma_f(^{239}\text{Pu})$ gebildet. Ein Vergleich mit den eigenen Werten (Abb. 23) zeigt, daß die Daten von Smirenkin zwischen 1-5 % niedriger liegen. Die Abweichung ist vermutlich auf die Unsicherheit bei der Bestimmung von Massen und die Unsicherheit für den verwendeten Spaltquerschnitt von ^{239}Pu zurückzuführen.

White und Warner /47/ haben von dem gemessenen Spaltquerschnittsverhältnis $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ (Abschnitt 8.1.3) den absoluten Spaltquerschnitt $\sigma_f(^{240}\text{Pu})$ abgeleitet. Die Spaltquerschnitte für ^{235}U sind in Abschnitt 8.1.2 angegeben. Ein Vergleich mit den Daten dieser Arbeit zeigt eine gute Übereinstimmung für die Meßpunkte bei 1 und 14,1 MeV, andererseits aber liegen die Daten von Warner bei 2,25 und 5,4 MeV um ca. 5 % niedriger. Dies ist vermutlich zurückzuführen auf die von White gemessenen tieferen Spaltquerschnittsverhältnisse $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ und die für die Normierung verwendeten Spaltquerschnitte von ^{235}U , die kleiner sind als die in dieser Arbeit gleichzeitig abgeleiteten Daten für diese Größe.

Henkel et al. /63/ haben aus dem gemessenen Spaltquerschnittsverhältnis $\sigma_f(^{240}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ den absoluten Spaltquerschnitt $\sigma_f(^{240}\text{Pu})$ in dem Energiebereich 0,866 - 8,12 MeV abgeleitet. Der Spaltquerschnitt von ^{235}U wurde von /64/ entnommen. Zum Nachweis der Spaltereignisse wurden die Spaltfolien back-to-back in einer Ionisationskammer eingebaut. Korrekturen für den Untergrund und die spontane Spaltzählrate wurden durchgeführt. Der statistische Fehler und der damals (1957) mit großer Ungenauigkeit gemessene Spaltquerschnitt von ^{235}U bilden wahrscheinlich zusammen den großen Fehler (>6 %) in dieser Bestimmung. Ein Vergleich mit den Daten dieser Arbeit zeigt, daß die Werte von Henkel im Energiebereich unterhalb 2 MeV um ca. 6 % tieferliegen, bei Energien darüber stimmen beide Spaltquerschnitte innerhalb der angegebenen Fehler überein.

8.2 Interpretation der Spaltquerschnitte

Die insgesamt beim Einschluß von hochenergetischen Neutronen bis zu 20 MeV an ^{239}Pu möglichen Reaktionen sind in Abb. 24 schematisch wiedergegeben. Bei Energien oberhalb von 1 MeV sind von den rechts aufgeführten Reaktionen nur die unteren drei von Bedeutung. Die Einfangreaktion tritt in diesem Energiebereich vergleichsweise selten auf. Sie hat einen um ein bis drei Größenordnungen niedrigeren Wirkungsquerschnitt als alle anderen Prozesse. Zum gesamten Spaltquerschnitt, der im Rahmen dieser Arbeit gemessen wurde, tragen alle links angegebenen Reaktionstypen bei, sobald die entsprechenden Schwellen dafür überschritten sind. Um die entsprechenden Reaktionen zu ermöglichen, muß die jeweilige Bindungsenergie aufgebracht werden, die zur Ablösung der zugehörigen Neutronenzahlen insgesamt erforderlich ist. Diese beträgt pro Neutron etwa 6 MeV, so daß bis ca. 6 MeV Anregungsenergie nur direkte Spaltung (First Chance Fission), zwischen ca. 6-12 MeV zusätzlich auch noch Spaltung über die $(n, n'f)$ -Reaktion (Second Chance Fission), oberhalb von ca. 12 MeV auch über die $(n, 2nf)$ -Reaktion (Third Chance Fission) usw. möglich ist. Wie man aus dem in der Mitte der Abbildung dargestellten Pfad ersieht, kommt es bei den verschiedenen Reaktionstypen jeweils zur Spaltung eines anderen Zwischenkerns. Dies könnte im Prinzip eine Möglichkeit darstellen, die einzelnen Spaltreaktionen getrennt zu messen, da der Spaltprozeß von dem System des spaltenden Zwischenkerns geprägt wird und die genauen Massen- bzw. Energieverteilungen, aber auch die Zahl der Spaltneutronen vom spaltenden Kern und seiner Anregungsenergie abhängen. In der Praxis ist jedoch eine Aufteilung über die Messung der bei der Spaltung entstehenden Produkte nicht sehr aussichtsreich, da die spezifischen Unterschiede für benachbarte Kerne einer Isotopenkette im allgemeinen gering sind und die charakteristischen Unterschiede durch die Meßungenauigkeit weitgehend überdeckt werden. Aussichtsreicher erscheint dagegen die Messung der Neutronenspektren. Aber auch hier gibt es Probleme, weil die meisten Meßmethoden nur die Erfassung der totalen Emissionsspektren, d.h. die Messung der Reaktionsneutronen zusammen mit den Spaltneutronen zulassen. Eine Aufteilung nach den verschiedenen Reaktionskanälen ist auch hier sehr ungenau und erfordert eine Reihe von experimentell nicht prüfbareren Annahmen. Aus den genannten Gründen ist z.Zt. nur wenig bekannt über die Second und Third Chance Spaltung. Die derzeitige Kenntnis beschränkt sich weitgehend auf die Tatsache, daß diese konkurrierenden Spaltkanäle existieren.

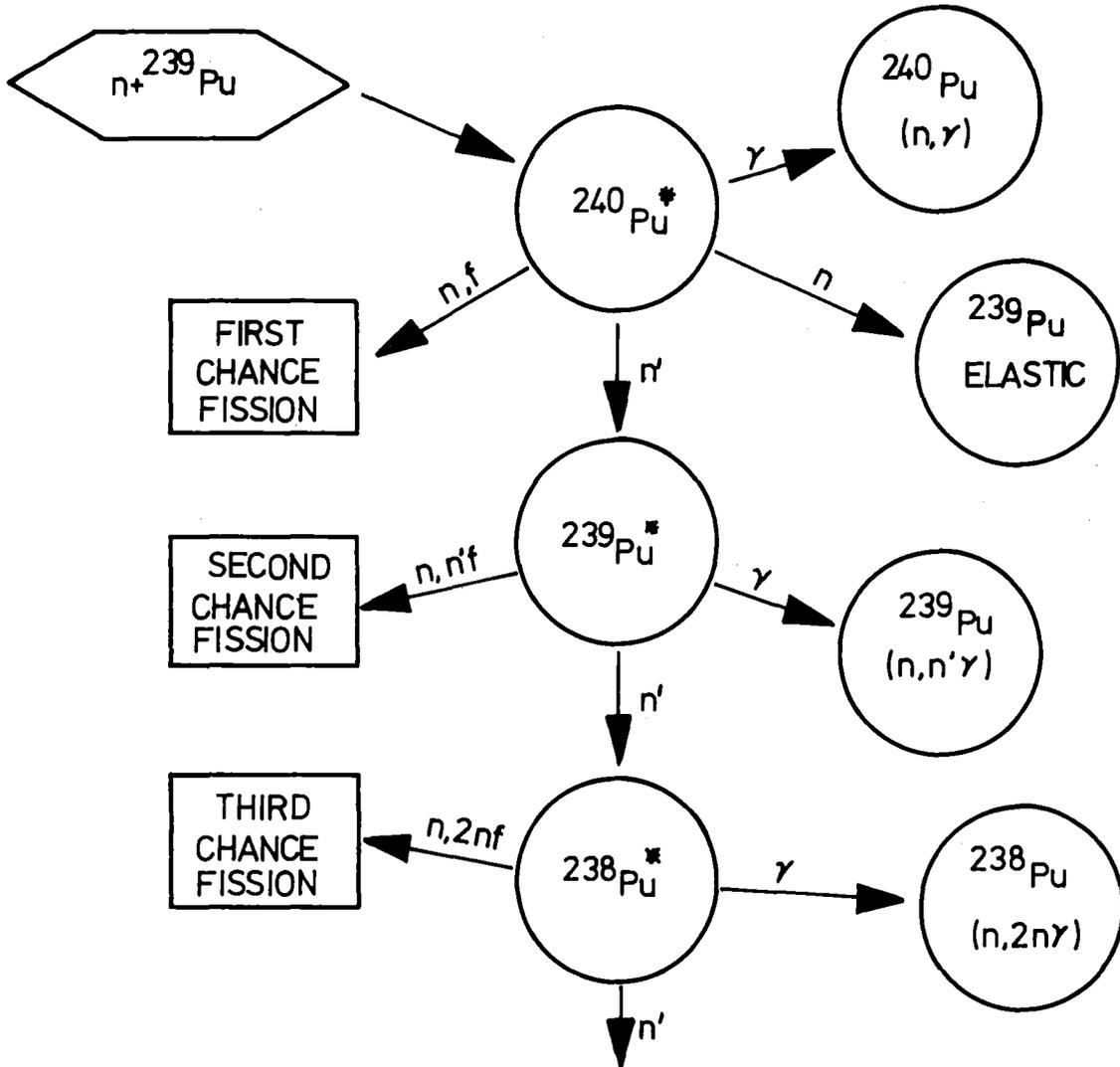


Abb. 24 Schematische Darstellung der Neutronenreaktionen an ^{239}Pu im Energiebereich zwischen 1-20 MeV.

Im Verlauf der Spaltquerschnitte findet man für alle bisher untersuchten Kerne oberhalb von einigen MeV eine mehr oder weniger ausgeprägte Stufenstruktur mit Schwellen bei Energien, die in etwa den Bindungsenergien der Neutronen entsprechen. Im einzelnen ist aber nicht bekannt, welchen Verlauf die genannten Spaltprozesse einzeln als Funktion der Energie besitzen. Eine grobe Vorstellung dieses Verlaufs basiert derzeit auf der Beobachtung des Wirkungsquerschnittsverlaufs von ^{238}U . Dieser zeigt zwischen 1 und 20 MeV in erster Näherung einen treppenförmigen Verlauf mit Stufen bei ca. 6,5, 13,5 und 20 MeV. Eine einfache Interpretation dieser Ergebnisse hat Howerton /64/ gegeben, der annahm, daß die Wirkungsquerschnitte für die Reaktionen (n,f) , $(n,n'f)$ und $(n,2nf)$ jeweils bald nach Überschreiten der Schwelle einen konstanten Wert erreichen, den sie dann im weiteren Energieverlauf beibehalten. Als Folge dieser Überlegung ergibt sich, daß die jeweilige Höhe über dem vorhergehenden Wirkungsquerschnittsniveau im wesentlichen dem Bruchteil der zugehörigen Spaltreaktion entspricht, die mit der neuen Spaltschwelle einsetzt. Im Falle des ^{238}U würde dies z.B. bedeuten, daß die "First Chance Fission" zwischen 1-20 MeV mit einem konstanten Beitrag von 0,6 b, die Second Chance Fission zwischen 6-20 MeV mit dem Wert 0,4 b und die Third Chance Fission zwischen 14-20 MeV mit ca. 0,3 barn zum gesamten Spaltquerschnitt beitragen. Dieser aus dem Befund von ^{238}U abgeleitete Schluß steht jedoch z.T. im Widerspruch zu den experimentellen Ergebnissen anderer Kerne, bei denen die Wirkungsquerschnitte oberhalb der Schwellen stark abfallen wird. Ein ähnliches Verhalten kennt man übrigens auch aus Untersuchungen von (n,p) - und (n,α) -Prozessen und den bei höheren Energien einsetzenden Konkurrenzreaktionen $(n,n'p,nn')$. Hier findet man daß bei Überschreiten der entsprechenden Schwellen der Anstieg der Wirkungsquerschnitte für diese Reaktionen durchweg mit dem Absinken der Wirkungsquerschnitte der Einfach-Emissionsprozesse gekoppelt ist. Das gleiche gilt auch, wie Münzel et al. (65) gezeigt haben, für analoge Reaktionen mit geladenen Teilchen. Einen Hinweis auf einen wieder absinkenden Anteil der jeweils niedrig liegenden Kategorie von Spaltreaktionen beim Einsetzen einer neuen Spaltschwelle liefern z.B. die gemessenen Anregungsfunktionen von ^{239}Pu und ^{240}Pu . Wie Abb. 16 und 17 zeigen, nehmen die jeweiligen Wirkungsquerschnitte an den Schwellen nach dem Erreichen eines Maximums jeweils deutlich wieder ab, bevor bei der nächsten Schwelle ein neuerlicher Anstieg einsetzt. Dieses Verhalten bei den Pu-Isotopen ist typisch für den Querschnittsverlauf zahlreicher anderer spaltbarer

Kerne.

Leider sind beim Spaltprozeß die Schwellen der verschiedenen Spaltkanäle nicht eindeutig bestimmt. Das liegt daran, daß ein neuer Spaltkanal nicht bei einer scharf definierten Energie, sondern erst über ein größeres Intervall wirksam wird /66/, da sich aufgrund des Tunneleffektes die Durchlässigkeit der Potentialbarriere kontinuierlich ändert. Bei diesem Experiment steigen die Spaltquerschnitte der beiden Pu-Isotope durch Öffnung der Spaltkanäle (n,n'f) und (n,2nf) von 10 auf 90 % bei folgender Energie an, deren Mitte oft als Spaltschwelle definiert wird:

^{239}Pu : Schwelle für Second Chance Fission (n,n'f) 6,65 MeV,
Schwelle für Third Chance Fission (n,2nf) 13,4 MeV
 ^{240}Pu : Schwelle für Second Chance Fission (n,n'f) 6,55 MeV,
Schwelle für Third Chance Fission (n,2nf) 14,1 MeV.

Der Verlauf des Spaltquerschnittsverhältnisses $\sigma_f(^{239}\text{Pu})/\sigma_f(^{235}\text{U})$ (Abb. 14) steigt bis 1 MeV aufgrund der stark fallenden ^{235}U -Wirkungsquerschnitte an. Im Bereich zwischen 1,5 - 6 ändern sich beide Einzelquerschnitte nur unwesentlich, so daß das Spaltquerschnittsverhältnis weitgehend konstant bleibt. Erst bei Einsatz der Schwelle für die Second chance Fission von ^{235}U , die niedriger liegt als die von ^{239}Pu , fällt das Wirkungsquerschnittsverhältnis abrupt ab, bis die fallende Tendenz durch das Einsetzen des entsprechenden Beitrags im ^{239}Pu kompensiert wird. Der gleiche Effekt ist im Bereich von 13 MeV beobachtbar, wo zuerst die Schwelle der n,2nf Reaktion im Uran wirksam wird, und später erst die (n,2nf)-Reaktion in ^{239}Pu einsetzt. Das Minimum bei 1 MeV steht im Zusammenhang mit dem von Käppeler und Dickmann /67/ gefundenen signifikanten Anstieg des Spaltquerschnitts von ^{235}U bei dieser Energie.

Die Erklärung des Verlaufs der Verhältnisse bei ^{240}Pu kann auf die gleiche Weise erfolgen. Ebenso wie bei ^{239}Pu setzten die Schwellen für die Reaktionen (n,n'f) und (n,2nf) beide später ein als die entsprechenden Schwellen von ^{235}U . Damit ist wiederum der qualitativ ähnliche Verlauf des Spaltquerschnittsverhältnisses zwischen 1-20 MeV erklärt. Der Abfall unterhalb von 1 MeV wird hier allerdings noch zusätzlich durch die Spaltschwelle für die n,f-Reaktion von ^{240}Pu verstärkt, so daß die Funktionswerte bereits bei 0,5 MeV um ein bis eineinhalb Größenordnungen niedriger liegen als im anschließenden Plateau zwischen 1-5 MeV.

LITERATURVERZEICHNIS

- /1/ V. Heinzl, Nuclear Power Project Planning and Implementation, Karlsruhe, Nuclear Research Center (1976) unveröffentlicht.
- /2/ Kerntechnik in Einzeldarstellungen, Bd. IX, R.G. Palmer, 1. Blatt, Schnelle Reaktoren, Vieweg Verlag, Braunschweig (1963).
- /3/ World Request List for Nuclear Data, IAEA Report, INDC (SEC)-55 URSR (1976).
- /4/ C. Campbell, NEA-Report, NEACRP-A-314, 1977.
- /5/ B. Adam, private Mitteilung an CCDN (1960).
- /6/ G. Grenier, private Mitteilung an S. Cierjacks (1977).
- /7/ J.W. Behrens and G.W. Carlson, Spec. Meeting on Fast Neutron Fission Cross Sections, Argonne (1976) ANL-76-90 S. 47.
- /8/ M. Cancé, G. Grenier, Spec. Meeting on Fast Neutron Fission Cross Sections, Argonne (1976) ANL-76-90, S. 237.
- /9/ F.C. Difillippo, R.B. Perez, B. de Saussure, D. Ulsen, R. Ingle, Spec. Meeting on Fast Neutron Fission Cross Sections, Argonne (1976) ANL-76-90, S. 114.
- /10/ J.W.T. Dubbs, Nucl. Cross Sections, 425, Vol. I, S. 81 (1975).
- /11/ KEDAK-Daten, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik.
- /12/ M. A. Kazerouni, F. Käppeler, private Mitteilung (1977).
- /13/ A. Sayres und C.S. Wu, Rev. Sci. Instr. 28, 758 (1957).
- /14/ M.A.F. Alves und A.J.P.L. Policarpo, Nucl. Instr. Meth. 57, 321 (1967).
- /15/ D. Blance, H. Brunet und J. Galy, Nucleus 11, 47 (1970).
- /16/ Valvo Handbuch, Rotovervielfacher (1975-1976).
- /17/ D.H. Nyuyen und L.M. Gorssman, Nucl. Sci. Eng. 30, 233 (1967).
- /18/ F. Nasyrov und S.V. Linve, Atomnaya Energiya 20, 464 (1966).
- /19/ B. Leugers, K. Kari, Meßapparatur zur Bestimmung der Spaltquerschnitte von ^{239}Pu und ^{240}Pu (1975) unveröffentlicht.
- /20/ B. Leugers, Ein Fortran-Programm zur Berechnung der Ansprechwahrscheinlichkeit von Spaltdetektoren (1976) unveröffentlicht.
- /21/ J.E. Simmons und R.L. Henkel, Phys. Rev. 120, 198 (1960).
- /22/ L. Blumenberg und R.B. Leachman, Phys. Rev. 116, 102 (1959).
- /23/ J.P. Unik et al., IAEA Conf. Phys. and Chem. of Fission (1973), IAEA-SM-174/209.

- /24/ L.C. Northcliffe und R.F. Schilling, Nucl. Data Tables A7, 233-463 (1970).
- /25/ K.F. Lauer und V. Verdingh, Nucl. Instr. Meth. 21, 161 (1963).
- /26/ S. Cierjacks, Dissertation, Karlsruhe (1967).
- /27/ S. Cierjacks, B. Duelli, P. Forti, D. Kopsch, L. Kropp, M. Lösel, J. Nebe, H. Schweickert, H. Unseld, Rev. Sci. Instr. 39, 1279 (1968).
- /28/ S. Cierjacks, P. Forti, K. Vonce, D. Kopsch, L. Kropp, J. Nebe, Phys. Rev. Lett. 23, 866 (1969).
- /29/ B. Breit, Hopkins, Nucl. Data Tables A9, 137 (1971).
- /30/ I. Schouky, S. Cierjacks, P. Brotz, D. Gröschel, B. Leugers, Nucl. Cross Section and Technology, 1977 II, 277, 280.
- /31/ I. Schouky, Dissertation, Karlsruhe (1977).
- /32/ B. V. Rybakov, V.A. Siderov, Fast Neutron Spectroscopy, New York (1960).
- /33/ J.L. Gammel in Marion Fowler, Fast Neutron Physics, Part II, 2185 (1963).
- /34/ E. Hunter, Los Alamos Scientific Laboratory, Report LA-5172 (1973).
- /35/ B.B. Rossi und H.H. Staub, Ionisations Chamber and Counters, S. 237, McGraw Hill, New York (1949).
- /36/ W.P. Poenitz, Nucl. Sci. Eng. 53, 370 (1974).
- /37/ P.H. White, J. Nucl. Energy A/B, 325 (1965).
- /38/ I. Szabo, J.L. Leroy und J.P. Margnette, Conf. on Neutron Phys., Kiev, 3, 27 (1973).
- /39/ M. Cancé und G. Grenier, Trans. Am. Nucl. Soc. 22, 664 (1975).
- /40/ E. Pfletschinger and F. Käppeler, Nucl. Sci. Eng. 40, 375 (1970).
- /41/ J.W. Behrens and G.W. Carlson, Livermore, Calif. USERDA, Rep. UCID-16981 (1975).
- /42/ W.P. Poenitz, Nucl. Sci. Eng. 40, 383 (1970).
- /43/ W.P. Poenitz, Spec. Meeting on Fast Fission Nuclear Cross Sections, Argonne (1976), ANL-76-90, S. 154.
- /44/ M.V. Savin, Yu. A. Khokhlov, Yu. S. Zamyatnin and I.N. Paranova, Atomnaya Energiya 29, No. 3, 218 (1970).
- /45/ T.A. Byer, Atomic Energy Rev. 10, 529 (1972).
- /46/ V.G. Nesterov und G.N. Smirenkin, Atomnaya Energiya 24, Nr. 2, 185 (1968).

- /47/ P.H. White und G.P. Warner, Journal of Nucl. Energy 21, 671 (1967).
- /48/ G. Grenier, Neutron Interlab Seminar, Karlsruhe, September 1977, und private Mitteilung.
- /49/ J.W. Meadows, Spec. Meeting on Fast Fission Cross Sections, Argonne (1976) ANL-76-90, S. 73.
- /50/ J.B. Czirr and G.S. Sidhn, Nucl. Sci. Eng. 57, 18 (1975).
- /51/ D.M. Barton, B.C. Diven, G.E. Hansen, G.A. Jarvis, P.G. Koontz und P.K. Smith, Preprint Los Alamos Scientific Laboratory (1975).
- /52/ I. Szabo und J.P. Marquette, Spec. Meeting on Fast Fission Cross Sections, Argonne (1976)-ANL-76-90, S. 208.
- /53/ I. Szabo, J.L. Leroy und J.P. Marquette, II. Nat. Conf. on Nucl. Physics, Kiev (1973).
- /54/ B. Adam, R. Batchelor und T.S. Green, Journal of Nucl. Energy A/B 14, 85 (1961).
- /55/ J.L. Fowler und J.E. Brolley, Rev. Mod. Phys. 28, 103 (1956).
- /56/ V.M. Pankratov, J. At. Energy. 14, 167 (1963).
- /57/ G. Hansen, S.M.C. Guire und R.K. Smith, private Mitteilung von Dr. L. Stewart (1970).
- /58/ R.K. Smith, R.L. Henkel und R.A. Nobles, Bull. Am. Phys. Soc. II, 2, 196 (1957).
- /59/ J. Frehaut, G. Mosinski, M. Soleilhac, EANDC(E)-154 "U", 1975.
- /60/ V.G. Nesterov und G.N. Smirenkin, Journal of Nucl. Energy Part A/B, 16, 51 (1962).
- /61/ D. Hughes und R. Schwartz, Brookhaven National Laboratory, Report N.Y. BNL-4 (1958).
- /62/ A. Hemmendinger, Proceedings of the International Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva 15, 344 (1958).
- /63/ R.L. Henkel, R.A. Nobles und R.U. Smith, AECD 256.
- /64/ R.J. Howarton, University of Calif., Lawrence Radiation Laboratory, Report UCRL-5351 (1958).
- /65/ G. Lange, H. Münzel, K.A. Keller, G. Pfennig, in Landold-Börnstein, Zahlenreihe aus Naturwissenschaft und Technik, N.S. Gruppe I, Bd. 5, Teil b, Springer Verlag (1973).
- /66/ L.N. Usachev, V.A. Pavlinchuk und N.S. Robofnov, Sov. J. Atomic Energy 16, 1242 (1965).
- /67/ F. Käppeler und F. Dickmann, Spec. Meeting on Fast Neutron Fission Cross Sections, Argonne (1976), ANL-76-90, S. 391.