

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

November/Dezember 1966

KFK 540

Institut für Angewandte Kernphysik

Zur Absolutmessung von effektiven Neutronenwirkungsquerschnitten im keV-Gebiet mit einer schnellen gepulsten Anordnung

H. Miessner, E. Arai

Measurements of Effective (Self-shielded) Neutron Cross Sections by a Fast Pulsed Method

E. Arai, H. Miessner, K. H. Beckurts



GESELLSCHAFT FUR KERNFORSCHUNG M.B.H.

KARLSRUHE

Sonderdruck aus "Nukleonik", 8. Band, 8. Heft, 1966, S. 428—435

Springer-Verlag, Berlin · Heidelberg · New York

Zur Absolutmessung von effektiven Neutronenwirkungsquerschnitten im keV-Gebiet mit einer schnellen gepulsten Anordnung*

HORST MIESSNER und Elichi Arai** Institut für Angewandte Kernphysik, Kernforschungszentrum Karlsruhe

Eingegangen am 31. März 1966

Zusammenjassung. Messungen effektiver (resonanzselbstabgeschirmter) Einfang- und Transportquerschnitte werden an Blei bei einer Neutronenenergie von 30 keV und an Uran bei 30 keV und 7,5 keV durchgeführt. Hierzu wird die im Bereich thermischer Neutronenenergie bewährte Pulsmethode auf den keV-Bereich übertragen. Die gemessenen effektiven Querschnitte werden mit berechneten Selbstabschirmfaktoren und bei unendlicher Verdünnung gemessenen Querschnitten anderer Autoren verglichen.

Effective (resonance self-shielded) capture and transport cross-sections have been obtained for lead at a neutron-energy of 30 keV and for uranium at 30 keV and 7.5 keV by fast neutron lifetime measurements. The measured effective cross-sections are compared with calculated self-shielding factors and "infinite dilution" cross sections, obtained by other authors.

1. Einleitung

Die genaue Kenntnis von Neutronenwirkungsquerschnitten ist sowohl für die Theorie der Kernreaktionen als auch für die Auslegung und Entwicklung von Kernreaktoren von Interesse. Hierbei kommt dem keV-Bereich eine besondere Bedeutung hinsichtlich der Entwicklung schneller Brutreaktoren zu.

Die bisherigen Messungen des Neutroneneinfangquerschnittes im keV-Gebiet liefern z. T. noch recht unterschiedliche Ergebnisse. Zwar stimmt der relative Verlauf der Querschnitte mit der Energie bei den einzelnen Messungen oft befriedigend überein, die Absolutwerte der Querschnitte unterscheiden sich jedoch erheblich; und zwar bei einer Neutronenenergie $E_n =$ 30 keV beispielsweise bei Gold und Tantal maximal um einen Faktor zwei [1-4]. Die Ursache hierfür kann u. a. darin liegen, daß die z. Z. meist benutzten Meßmethoden im keV-Bereich (Aktivierungsmethode, Messung der prompten Gammastrahlung mittels Szintillatortank oder Moxon-Rae-Detektor) nicht direkt den Absolutwert des Einfangquerschnittes liefern und somit die üblichen Eichprobleme bei der Flußmessung im keV-Gebiet enthalten. Die Methode der Kugelschalentransmission [5, 6] erlaubt zwar die direkte Absolutmessung des Einfangquerschnittes, sie wurde jedoch bisher nur selten benutzt. Darüberhinaus wurden mit den bisherigen Meßmethoden keine Messungen von effektiven ("selbstabgeschirmten") Neutroneneinfangquerschnitten durchgeführt.

Totale Wirkungsquerschnitte lassen sich mit hoher Genauigkeit aus Transmissionsmessungen gewinnen, jedoch sind Messungen effektiver totaler Querschnitte bisher nur im Energiebereich zwischen 0,3 und 2,9 MeV durchgeführt worden [7].

In dem vorgeschlagenen Meßverfahren wird die bewährte Pulsmethode zur Messung von Absorptionsquerschnitten und Diffusionskoeffizienten im Bereich thermischer Neutronenenergie [8] auf den keV-Bereich übertragen. Hierbei wird ein kurzer Puls (1 ns oder 10 ns) möglichst monoenergetischer Neutronen mit Energien unterhalb der Schwelle für inelastische Streuung in eine aus der Probesubstanz bestehende Anordnung injiziert und das anschließende Abklingen des Neutronenfeldes beobachtet. Ist die Substanz hinreichend schwer und können demzufolge Moderationseffekte während des Abklingvorganges vernachlässigt werden, so zerfällt das Neutronenfeld dann exponentiell mit der Zeitkonstante

$$\alpha_0 = v_0 \cdot \Sigma_a + D_0 B^2 + C B^4, \tag{1}$$

 mit

$$D_0 = \frac{v_0}{3 \cdot \Sigma_{\rm tr}},\tag{2}$$

$$C = \frac{v_0}{45 \cdot \Sigma_t^3} \ [9], \tag{3}$$

$$B^{2} = \pi^{2} \left\{ \frac{1}{(a+1,42/\Sigma_{\rm tr})^{2}} + \frac{1}{(b+1,42/\Sigma_{\rm tr})^{2}} + \frac{1}{(c+1,42/\Sigma_{\rm tr})^{2}} \right\}.$$
(4)

 $v_0 = Neutroneneinschußgeschwindigkeit$

- $\Sigma_a = \text{makroskopischer Absorptionsquerschnitt}$
- $\Sigma_t = \text{makroskopischer totaler Querschnitt}$
- $\Sigma_{\rm tr} = {\rm makroskopischer \ Transportquerschnitt}$
- B² = Buckling für einen Quader mit den Kantenlängen a, b, c.

^{*} Diese Arbeit wurde im Rahmen der Assoziation zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft und der Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. auf dem Gebiet der schnellen Reaktoren durchgeführt. ** Als Gast der Technischen Hochschule Tokio, Institut

für Kernreaktoren.

Höhere Glieder der Entwicklung von α_0 nach B^2 können in der Regel vernachlässigt werden.

Jedoch bereits bei den interessierenden schweren Probesubstanzen (U, Pb, Ta) ist die elastische Moderation nicht mehr vernachlässigbar. Da nach Gl. (1) die Neutronenlebensdauer mit der Geschwindigkeit abnimmt, erfolgt der Zerfall des Neutronenfeldes infolge Moderation nicht mehr streng exponentiell, sondern langsamer ("Durchhängen" der Abklingkurven). Es ist nun möglich, diesen Moderationseffekt bei Berücksichtigung der Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte zu berechnen und ihn aus den einzelnen Abklingkurven zu eliminieren. Hierzu läßt sich eine Korrekturfunktion F(t) berechnen [10], durch die die gemessene Neutronenzahl in Abhängigkeit von der Zeit — N(t) — dividiert wird:

$$\frac{N(t)}{F(t)} \sim e^{-\alpha_0 t}.$$
(5)

F(t) hängt u.a. vom Streu- und Einfangquerschnitt der Probesubstanz ab, die zumindest in grober Näherung bekannt sein sollten. Die so korrigierte Neutronendichte zerfällt dann exponentiell mit der Zeitkonstante α_0 . Im Anhang wird die Berechnung von F(t) durchgeführt.

Durch Messung der Zerfallskonstante α_0 an verschieden großen Anordnungen der Probesubstanz (Änderung von B^2) ergibt sich die Möglichkeit, Σ_a und $\Sigma_{\rm tr}$ zu bestimmen. Der Vorteil dieser Meßmethode liegt vor allem darin, daß man direkt den Absolutivert des Einfangquerschnittes erhält.

Die Pulsmethode im Energiebereich um 1 MeVwurde von BEGHIAN u. a. [11, 12] untersucht und zur Messung des nichtelastischen Wirkungsquerschnittes an Pb, U, Bi und Fe angewandt.

Der in der vorliegenden Arbeit interessierende Energiebereich von einigen keV unterscheidet sich vom thermischen und MeV-Bereich insbesondere durch die ausgeprägte Resonanzstruktur der Wirkungsquerschnitte. Die Resonanzen liegen zwar bei den interessierenden schweren Probesubstanzen (U, Ta, Au, Sb) im keV-Bereich sehr eng, jedoch sind sie trotz Dopplerverbreiterung noch weitgehend getrennt. So beträgt beispielsweise beim U^{238} bei $E_n = 30 \text{ keV}$ die totale Resonanzbreite einschließlich Dopplerverbreiterung 4.5 eV, der mittlere Niveauabstand der s-Wellenresonanzen 18,5 eV. Die Resonanzstruktur des Wirkungsquerschnittes wird sich stark auf das Verhalten des gepulsten Neutronenfeldes auswirken, da während des Abklingprozesses infolge Moderation die Neutronen über die Resonanzen geführt werden. Hierbei ist zu bemerken, daß bei den interessierenden schweren Resonanzabsorbern der mittlere Niveauabstand klein ist gegenüber dem mittleren Energieverlust bei einem elastischen Stoß. Letzterer beträgt bei U²³⁸ bei $E_n =$ 30 keV etwa 250 eV. Die theoretische Behandlung des zeitabhängigen Problems wird hierdurch vereinfacht und führt zu folgendem Ergebnis [10]: Aufgrund der Resonanzselbstabschirmung treten anstelle der wah-ren Wirkungsquerschnitte Σ_a und Σ_{tr} in Gl. (1) die Effektivwerte Σ_a^{eff} und Σ_{tr}^{eff} , die aus den wahren Quer-schnitten durch Mittelung über das Flußspektrum $\varphi(E) \sim \frac{1}{\Sigma_t(E)}$ hervorgehen.

In guter Näherung gilt:

$$\Sigma_{a}^{\text{eff}} = \frac{\left\langle \frac{\Sigma_{a}}{\Sigma_{t}} \right\rangle}{\left\langle \frac{1}{\Sigma_{t}} \right\rangle}, \qquad (6)$$
$$\Sigma_{\text{tr}}^{\text{eff}} = \frac{\left\langle \frac{1}{\Sigma_{t}} \right\rangle}{\left\langle \frac{1}{\Sigma_{t} \cdot \Sigma_{\text{tr}}} \right\rangle}. \qquad (7)$$

Die Klammer bedeutet Mittelung über einen Energiebereich, der viele Resonanzen enthält, jedoch klein ist gegenüber dem mittleren Energieverlust bei einem elastischen Stoß.

Diese Ausdrücke, die für das vorliegende zeitabhängige Problem gelten, sind identisch mit den aus der Theorie der Dopplerkoeffizienten schneller Reaktoren bekannten Beziehungen für die Resonanzselbstabschirmung in der Wignerschen "Narrow Resonance"-Näherung. Der Einfluß der Resonanzselbstabschirmung läßt sich formal durch die Selbstabschirmfaktoren f_a und f_t beschreiben:

$$\Sigma_a^{\text{eff}} = f_a \cdot \langle \Sigma_a \rangle, \tag{6'}$$

$$\Sigma_{\rm tr}^{\rm eff} = f_t \cdot \langle \Sigma_{\rm tr} \rangle. \tag{7'}$$

 $\langle \Sigma_a \rangle$ und $\langle \Sigma_{\rm tr} \rangle$ sind die über viele Resonanzen energiegemittelten Querschnitte bei unendlicher Verdünnung der Testsubstanz, wie sie üblicherweise in Wirkungsquerschnittstabellen zusammengestellt sind. f_a und f_t sind für viele Kerne bei verschiedenen Energien von ABAGJAN u. a. [13] berechnet worden. Bei einer Neutronenenergie von $E_n=30~{\rm keV}$ ist bei den hier interessierenden Substanzen f_a und f_t nahezu 1 und der Selbstabschirmeffekt kann leicht eliminiert werden. Mit abnehmender Energie tritt dagegen die Resonanzselbstabschirmung stärker in Erscheinung; f_a und f_t betragen beispielsweise bei U²³⁸ bei $E_n=7,5~{\rm keV}$ 0,65 bzw. 0,75.

Die vorgeschlagene Meßmethode kann also im höheren keV-Bereich ($E_n \gtrsim 30 \text{ keV}$) zur Absolutmessung von $\langle \Sigma_a \rangle$ benutzt werden. Im unteren keV-Bereich dient sie zur Absolutmessung von Σ_a^{eff} und $\Sigma_{\text{tr}}^{\text{eff}}$ oder — sofern $\langle \Sigma_a \rangle$ und $\langle \Sigma_{\text{tr}} \rangle$ mit Hilfe anderer Meßmethoden bestimmt werden — zur Direktmessung der Selbstabschirmfaktoren f_a und f_t , für die bisher nur Rechenwerte vorliegen. Die genaue Kenntnis von Resonanzselbstabschirmfaktoren ist für die Theorie bzw. Auslegung schneller Reaktoren von besonderem Interesse. Im folgenden soll die Meßmethode eingehend untersucht und an Pb und U²³⁸ erprobt werden.

2. Meßanordnung

Die Meßapparatur ist schematisch in Abb. 1 dargestellt. Zur Neutronenerzeugung steht ein gepulster 3 MeV van de Graaff (High Voltage Engineering, Spannungsstabilität ± 1 keV) mit Pulslängen von 1 und 10 ns (wählbar), einer Pulsfolgefrequenz von 1 MHz (2-, 3-, 4fach untersetzbar) mit einem mittleren Strom von maximal 8 μ A zur Verfügung. Die Protonenpulse durchlaufen ein elektrostatisches "Pick-up"-System, das das Nullsignal (Referenzsignal) für die Zeitmessung liefert, und erzeugen am Target über eine Kernreaktion Neutronenpulse. Diese werden in einen quaderförmigen Block der Probesubstanz (Kantenlänge ca. 10 bis 20 cm) injiziert und das zeitliche Abklingen des Neutronenfeldes im Block wird mit Hilfe des Detektors A (Li-Glas-, bzw. LiJ-Szintillator mit Multiplier) gemessen. Hierzu werden die Impulse des zeitbestimmenden ("schnellen") Ausgangs des Detektors über einen schnellen Trigger als Startsignal, die Impulse vom "Pick-up"-System als Stopsignal auf eine rein digital arbeitende schnelle Zeitkodiereinheit [14] mit eingebauter Torstufe gegeben. Die Zeitkodiereinheit (integrale Nichtlinearität $\leq \pm 0.1\%$, differentielle Nichtlinearität $\leq \pm 1,5\%$) läßt sich auf Kanalbreiten ≥ 1 ns einstellen. Die Zeitinformation wird auf einen CAE 510 Kleinrechner (8192 Ferritkernspeicherplätze mit je 18 bit) gegeben, der während der Messung als Vielkanalanalysator programmiert ist und im Anschluß daran zur Korrektur und Auswertung der Abklingspektren dient.



Zur Diskriminierung gegenüber Gammauntergrund dient der amplitudenbestimmende ("langsame") Ausgang des Detektors A (11. Dynode). Mittels Impulshöhendiskriminierung (Einkanaldiskriminator) werden nur Impulse auf das Tor der Zeitkodiereinheit gegeben, deren Amplituden nachgewiesenen Neutronen entsprechen.

Der Detektor B (Li-Glas-Szintillator mit Multiplier) dient während der Messung als Flugzeitspektrometer zur Kontrolle der Energie der Einschußneutronen (s. 2.2) der Sc(p, n)Ti-Reaktion. Die angeschlossene Elektronik ist analog der des Detektors A, zur Zeitmessung dient hier ein Zeit-zu-Amplitudenkonverter (Modell Ortec 263) mit nachgeschaltetem Vielkanalanalysator (TMC CN 1024). Die Zähler dienen zur Zählraten- und Stabilitätskontrolle.

2.1 Experimentelle Einzelheiten. Als neutronenerzeugendes Target dienen metallisches Lithium (ca. 10 keV dick) und Scandium (ca. 1 keV dick), die auf eine 0,2 mm dicke Tantalunterlage im Hochvakuum aufgedampft sind. Mit Hilfe der Li⁷(p, n)Be⁷-Reaktion werden in Nähe der Reaktionsschwelle (Protonenergie $E_p = 1,88$ MeV) Neutronen der Energie (30 ± 6) keV in Vorwärtsrichtung erzeugt. Die Breite der Neutronenenergie ist wegen der Reaktionskinetik in Schwellennähe durch die Protonenenergieschwankung von ± 1 keV bedingt. Zur Erzeugung von Neutronen kleinerer Energie dient die Sc⁴⁵(p, n)Ti⁴⁵-Reaktion ebenfalls in Schwellennähe ($E_p = 2,911$ MeV). Diese Reaktion liefert wegen der ausgeprägten Resonanzstruktur des (p, n)-Wirkungsquerschnittes Neutronen mit extrem kleiner Energiebreite, die bei einem dünnen Target unabhängig von der Protonenenergieschwankung allein durch die Resonanzbreite bestimmt wird. So liefert die erste Resonanz der Sc-Reaktion oberhalb der Schwelle Neutronen der Energie (8,0+0,2) keV in Vorwärtsrichtung (gemessen mittels Flugzeitmethode). Zwar beträgt die Neutronenausbeute bei dieser Sc-Resonanz in Vorwärtsrichtung --- auf gleichen Energiebereich und Raumwinkel bezogen - nur etwa 25% der Ausbeute eines dünnen Li-Targets unter 90° [15], jedoch ist Sc zur Erzeugung von monoenergetischen Neutronen im unteren keV-Bereich im vorliegenden Fall günstiger als Li: Die Änderung der Neutronenenergie mit dem Neutronenaustrittswinkel ist aufgrund der Reaktionskinetik beim Sc erheblich kleiner als beim Li. Demzufolge ist der verfügbare Raumwinkel, der durch die zulässige Energiebreite der Neutronen (ca. $\pm 10\%$) entsprechend einem Neutronenaustrittswinkel von $\pm 30^{\circ}$ gegeben ist, beim Sc etwa 60mal größer beim Li und somit ist die zur Verfügung stehende Neutronenintensität beim Sc etwa 15mal größer! Darüberhinaus entfallen die beim Li unter 90° oder in Rückwärtsrichtung auftretenden Probleme der Kollimierung und Abschirmung gegenüber der intensiven Neutronenstrahlung in Vorwärtsrichtung.

An den *Detektor* werden folgende Forderungen gestellt:

1. Er soll einschließlich seiner Abschirmung materialmäßig möglichst sparsam ausgeführt sein, um das Buckling der Probesubstanz durch Rückstreuung nicht zu beeinflussen.

2. Seine Zeitauflösung soll ausreichend sein, um Abklingkurven mit Lebensdauern $1/\alpha \gtrsim 50$ ns messen zu können.

3. Seine Ansprechwahrscheinlichkeit für Neutronen im unteren keV-Bereich soll möglichst groß sein, dagegen soll er möglichst unempfindlich gegenüber langsamen Neutronen und y-Strahlung sein. In der vorliegenden Arbeit werden Li-Glas- und LiJ-Szintillationsdetektoren benutzt, die diese Anforderungen weitgehend erfüllen. Beide Detektoren bestehen aus einem schnellen Multiplier (Typ 56 AVP) mit aufgesetztem Li-Glas (Typ Nuclear Enterprises Ne 905, Dicke 12 bzw. 6 mm, Durchmesser 38 mm) bzw. LiJ(Eu)-Kristall (Hersteller Nuclear Enterprises, Dicke 12 mm, Durchmesser 25 mm). Zwecks Erzielung einer hohen Ansprechwahrscheinlichkeit ist eine möglichst große Szintillatordicke erwünscht. Diese ist jedoch begrenzt durch die maximal zulässige Neutronenflugzeit im Szintillator, die von Einfluß auf die Zeitauflösung des Detektors (s. u.) ist. Die Ansprechwahrscheinlichkeit der benutzten Detektoren bei verschiedenen Neutronenenergien ist in Tabelle 1 angegeben.

Die Szintillatoren sind gegen langsame Neutronen seitlich durch 10 mm und frontal durch 5 mm dickes Sinter-Borcarbid bzw. 1 mm dickes Cd (bei $E_n = 7.5$ keV) abgeschirmt. Wegen der hohen Empfindlichkeit der Detektoren gegenüber γ -Untergrund wird dieser mittels Pulshöhendiskriminierung weitgehend reduziert. Aufgrund der Li⁶ (n, α) T-Reaktion im Szintillator liefern Neutronen im Amplitudenspektrum (amplitudenbestimmender Ausgang des Multipliers) ein ausgeprägtes Maximum. Dieses ist beim Li-Glas-Detektor einer γ -Energie von 1,6 MeV, beim LiJ-Detektor einer solchen von 4,1 MeV äquivalent. Bei den Messungen an Blei ist das Signal/Untergrundverhältnis des Li-Glas-Detektors völlig ausreichend (bis zu vier Dekaden der Abklingkurven sind auswertbar). Dagegen sind Messungen an Uran wegen seines radioaktiven Zerfalls und des hiermit verbundenen hohen γ -Untergrundes, der sich bis zu einer Energie von 1,9 MeV erstreckt, praktisch undurchführbar. Der LiJ-Detektor erlaubt dagegen auch eine Diskriminierung gegenüber dieser Strahlung und kann mit ausreichendem Signal/Untergrundverhältnis bei den Uranmessungen eingesetzt werden.

Die Abklingzeiten der Szintillatoren betragen beim Li-Glas 100 ns, beim LiJ 1200 ns (Herstellerangaben). Die Impulse am zeitbestimmenden (schnellen) Ausgang der Detektoren haben nach Differenzieren und Clippen eine Halbwertsbreite von ca. 30 ns. Die Zeitauflösung des Detektors Δt ist gegeben durch

$$\Delta t = \sqrt{\Delta t_1^2 + \Delta t_2^2}.$$
 (8)

 $\Delta t_1 =$ Neutronenflugzeit innerhalb des Szintillators

 $\Delta t_2 =$ Zeitungenauigkeit, hervorgerufen durch die Statistik im Szintillator und Laufzeitschwankungen im Photomultiplier sowie Zeitungenauigkeit der angeschlossenen Elektronik.

Während Δt_1 durch Neutronengeschwindigkeit und Szintillatordicke bestimmt ist, kann Δt_2 direkt experimentell bestimmt werden. Hierzu wird das Zeitspektrum von kurzen (1 ns) γ -Pulsen aufgenommen, die über eine (p, γ) -Reaktion mit Hilfe des van de Graaff-Generators erzeugt werden. Die Halbwertsbreite des γ -Peaks im Zeitspektrum liefert Δt_2 , das beim Li-Glas-Detektor zu 5 ns, beim LiJ-Detektor zu 15 ns bestimmt wird. Der größere Wert beim LiJ ist bedingt durch seine längere Abklingzeit und die daraus folgende kleinere Photoelektronenzahl pro Szintillation. Die gesamte Zeitauflösung Δt — wie sie sich aus Δt_1 (be-rechnet aus Flugzeit und Szintillatordicke) und Δt_2 (gemessen) nach Gl. (8) ergibt — ist für die beiden Detektoren bei verschiedenen Neutronenenergien in Tabelle 1 dargestellt. Δt ist mindestens um einen Faktor 3 kleiner als die im folgenden gemessenen Neutronenlebensdauern. Die Tabelle enthällt außerdem die Neutronenansprechwahrscheinlichkeiten der Detektoren (Herstellerangaben).

Tabelle 1. Ansprechwahrscheinlichkeit η und Zeitauflösung Δt der benutzten Detektoren bei verschiedenen Neutronenenergien E_n . Szintillatordicke: 1.2 (0.6) cm

Detektor	$E_n(\text{keV})$	η(%)	∆t (ns)		
Li-Glas	30 7,5	1,9 (0,9) 3,6 (1,8)	7 (6) 11 (7)		
LiJ	30 7,5	1,7 3,3	$\frac{16}{18}$		

Die *Probesubstanz* besteht aus einem quaderförmigen Block, der auf einer materialmäßig sparsam ausgeführten Messingunterlage (Kranaufhängung) sitzt. Der Bleiblock (Reinheit des Pb 99,9%) ist aus Bausteinen der Größe $(5 \cdot 10 \cdot 20)$ cm³ sowie $(2, 5 \cdot 10 \cdot 20)$ cm³ zusammengesetzt. Das Uran (Natururan, Reinheit 99,9%) liegt in Plättchenform der Größe $(5, 2 \cdot 5, 2 \cdot 0, 31)$ cm³ vor.

3. Durchführung der Messungen und ihre Auswertung

Um die Querschnitte Σ_a^{eff} und $\Sigma_{\text{tr}}^{\text{eff}}$ aus der Messung der Neutronenabklingkonstante in Abhängigkeit des Bucklings möglichst genau bestimmen zu können, sollte das Buckling innerhalb eines möglichst großen Bereiches variiert werden. Dieser Bereich ist jedoch aus folgenden Gründen begrenzt: Das kleinste Buckling ist durch die Materialmenge gegeben, die für die Messung zur Verfügung steht. Die obere Grenze des Bucklings ist bedingt durch den bei kleinen Probedimensionen störenden Einfluß von Detektor und Probeunterlage. Diese Störung führt zu einer Änderung der Neutronenlebensdauer und kann durch Hinzufügen eines zweiten symmetrisch angeordneten Detektors und einer der Unterlage gleichwertigen Materialmenge kontrolliert werden. Das größte Buckling wird bei allen Messungen so gewählt, daß die Störung innerhalb der Meßgenauigkeit bleibt.

3.1 Messungen an Blei. Die Messungen an Blei sollen grundlegende Informationen über das Verhalten des gepulsten Neutronenfeldes im keV-Gebiet liefern:

1. Nachweis des exponentiellen Zerfalls des Neutronenfeldes unter Berücksichtigung der Moderationskorrekturfunktion F(t).

2. Untersuchung der Oberwellenanteile in den Abklingkurven.

3. Bestimmung der Diffusionsparameter.

Als Detektor dient der oben beschriebene Li-Glas-Detektor.

Abb. 2 zeigt das Abklingspektrum des Neutronenfeldes in einem Bleiblock mit dem Buckling $0,0952 \,\mathrm{cm}^{-2}$. Der Detektor ist — wie bei den folgenden Messungen - zur Unterdrückung höherer Moden (1,1,2) senkrecht zur Einschußrichtung (in der Mitte der Seitenfläche des Blocks) angeordnet. Die Einschußenergie beträgt $E_n = (30 \pm 6)$ keV, die Neutronenpulslänge 10 ns, die Pulsfolgefrequenz 1 MHz und die Meßzeit 2 Std. Abb. 2 zeigt, daß ca. 600 ns nach Pulsinjektion das Neutronenfeld völlig abgeklungen ist. Der Untergrund ist zeitunabhängig und kann somit eliminiert werden. Das Abklingspektrum zeigt — auch nach Untergrundkorrektur - keinen exakt exponentiellen Abfall. Erst die Division des untergrundkorrigierten Spektrums durch F(t) liefert einen streng exponentiellen Verlauf, der über etwa drei Dekaden beobachtbar ist. Allerdings wird bei der Auswertung nur ein Bereich von etwa zwei Dekaden benutzt, für den $F(t) \leq 2$ ist. Für diesen Bereich ist die Moderationskorrektur exakt gültig. Es ist hierbei zu bemerken, daß zwar F(t) verhältnismäßig groß ist, die Neigungen von korrigierter und nichtkorrigierter Kurve (wenn hier nur der noch einigermaßen exponentielle Verlauf betrachtet wird) sich jedoch um weniger als 10% unterscheiden. Das entspricht einer α-Korrektur von ebenfalls weniger als 10%. Die Untergrundkorrektur und die F(t)-Korrektur des gemessenen Abklingspektrums werden mit Hilfe der Rechenanlage direkt im Anschluß an die Messung (,,on line") durchgeführt. Danach erfolgt ebenfalls mit der Rechenanlage - die Bestimmung

432



Abb. 2. Abklingspektrum eines 30 keV-Neutronenfeldes in einem Bleiblock $B^2 = 0.0952$ cm⁻²



von α_0 und seiner Fehlergrenze nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate [16] (Gewicht proportional zur statistischen Genauigkeit). Messungen an gleicher Geometrie bei verschiedenen Detektorpositionen (90° und 180° zum Neutronenstrahl) liefern die gleiche Lebensdauer, die Abklingkurven unterscheiden sich nur durch den (bei senkrechter Detektorposition kleineren) Oberwellengehalt. Außerdem werden Messungen an verschiedenen Geometrien angenähert gleichen Bucklings durchgeführt. Sie zeigen, daß die Lebensdauer nur buckling- und nicht zusätzlich geometrieabhängig ist.

In Abb. 3 ist die gemessene Neutronenabklingkonstante in Blei [Neutronenenergie (30 ± 6) keV] als Funktion des Buckling dargestellt. Die Kurve zeigt den nach Gl. (1) erwarteten Verlauf. Zur Bestimmung von $\Sigma_{tr}^{eff} = v_0/3 D_0$ aus den Meßdaten wird die Methode der kleinsten Fehlerquadrate angewandt, wobei das Gewicht proportional $1/B^2$ gewählt wird, da der Relativfehler der Lebensdauermessungen über den ganzen Meßbereich etwa gleich groß ist. Hierbei ist folgendes zu beachten:

Da Σ_a^{eff} beim Blei sehr klein ist und demzufolge außerhalb der Nachweisgrenze

des Meßverfahrens liegt $(v_0 \cdot \Sigma_a^{\text{eff}}$ würde etwa um Strichbreite über dem Koordinatenursprung liegen), wird es gleich Null gesetzt. Auch die transporttheoretische Korrekturgröße C ist bei den vorliegenden Verhältnissen klein und experimentell nicht erfaßbar. Daher wird für C der theoretische Wert C = $v_0/45 \cdot \Sigma_t^3$ benutzt. Da das Buckling über die Extrapolationslänge mit Σ_{tr} verknüpft ist [s. Gl. (4)], wird es bei dem Rechenverfahren mit Σ_{tr} veränderlich angenommen. $\Sigma_{\text{tr}}^{\text{eff}}$ wird dann iterativ bestimmt, wobei als Startwert der BNL-Wert (BNL 325) eingesetzt wird. Der so gewonnene Querschnitt $\Sigma_{\text{tr}}^{\text{eff}}$ findet sich in Tabelle 2.

3.2 Messungen an Uran. Die Messungen an Uran dienen der Bestimmung der Wirkungsquerschnitte Σ_a^{eff}

und $\Sigma_{\rm tr}^{\rm eff}$ bei einer Neutronenenergie von 30 keV und 7,5 keV. Abb. 4 zeigt als Beispiel das Abklingspektrum des Neutronenfeldes in einem $(15, 3 \cdot 15, 3 \cdot 15, 2)$ cm³ großen Uranblock. Die Einschußenergie beträgt $E_n = (30 \pm 6)$ keV, die Neutronenpulslänge 10 ns, die Pulsfolgefrequenz 1 MHz, die Meßzeit etwa 3 Std. Als Detektor dient der oben beschriebene LiJ-Detektor. Abb. 5 zeigt ein entsprechendes Abklingspektrum bei einer Einschußenergie von (7,5+0,8)keV in einem $(15,3\cdot15,3\cdot20,1)$ cm³ großen Uranblock. Die Neutronenpulslänge beträgt 10 ns, die Pulsfolgefrequenz 500 kHz, die Meßzeit etwa 6 Std. Die Abklingspektren zeigen den gleichen Verlauf wie beim Blei (Abb. 2). Die Korrektur und Auswertung der Abklingspektren erfolgt wie beim Blei mit Hilfe der Rechenanlage.

Abb. 6 zeigt die gemessene Abklingkonstante im Uran als Funktion des Buckling bei einer Neutronenenergie $E_n =$ (30 ± 6) keV, Abb. 7 bei einer Energie $E_n = (7.5 \pm 0.8)$ keV. Es ist zu bemerken,

daß bei $E_n = 7,5$ keV für große Geometrien die Abklingspektren mit untersetzter Pulsfolgefrequenz gemessen werden müssen, da hierbei wegen der längeren Lebensdauer das Neutronenfeld nach 1 µs noch nicht vollständig abgeklungen ist und ohne Untersetzung die Untergrundbestimmung schwierig wäre. Die Querschnitte $\Sigma_a^{\rm eff}$ und $\Sigma_{\rm tr}^{\rm eff}$ werden aus den gemessenen Lebensdauern nach Gl. (1) mit Hilfe der Methode der kleinsten Fehlerquadrate bestimmt. Hierbei wird B^2 mit Σ_{tr}^{eff} veränderlich angenommen [vgl.Gl.(4)] und für C wird wegen seiner Kleinheit der theoretische Wert $v_0/45 \cdot \Sigma_t^3$ benutzt. Σ_a^{eff} und $\Sigma_{\text{tr}}^{\text{eff}}$ werden iterativ bestimmt, als "Startwert" dient der Σ_{tr}^{eff} -Wert, der den Wirkungsquerschnittstabellen von SCHMIDT [17] bei Berücksichtigung der f_t -Werte von Abagjan u. a. [13] entnommen ist. Die gemessenen (auf U²³⁸ korrigierten) Wirkungsquerschnitte sind in Tabelle 2 zusammengestellt.

4. Ergebnisse und Diskussion

Tabelle 2 zeigt die gemessenen effek-tiven Querschnitte σ_a^{eff} und $\sigma_{\text{tr}}^{\text{eff}}$ für Blei und Uran. Da z. Z. keine vergleichbaren experimentellen Effektivwerte vor-

liegen, sind die gemessenen Effektivwerte nach Division durch die von ABAGJAN u. a. [13] berechneten Selbstabschirmfaktoren (gewonnen durch graphische Interpolation) den gemessenen $\langle \sigma \rangle$ -Werten anderer Autoren gegenübergestellt. Blei zeigt im keV-Bereich praktisch keine Resonanzselbstabschirmung, die Zahl der Resonanzen ist gering, f_t ist gleich 1. Der Einfangquerschnitt ist klein ($\approx 3 \text{ mb}$) und liegt unterhalb der Nachweisgrenze dieses Meßverfahrens. Der Transportquerschnitt stimmt sehr gut mit Meßwerten anderer Autoren überein. Für Uran ist die Resonanzselbstabschirmung bei 30 keV noch gering (f_a und f_t liegen nahe bei 1), bei 7,5 keV aber schon beträchtlich $(f_a = 0.65; f_t = 0.75)$. Die Übereinstimmung der gemessenen Effektivwerte nach Division durch t mit $\langle \sigma \rangle$ -Werten anderer Autoren ist befriedigend. Insbesondere ist die Übereinstimmung des Einfangquerschnittes mit neueren Messungen, sowohl bei 30 keV als auch bei 7,5 keV gut. Auch der Transportquerschnitt bei 7,5 keV stimmt sehr gut mit Werten anderer Autoren überein, jedoch liegt der Transportquerschnitt bei 30 keV um ca. 10% höher als andere Meßwerte.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß sich für Uran und Blei das vorliegende Meßverfahren bewährt hat, und daß die gemessenen effektiven Neutronenwirkungsquerschnitte in Einklang sind mit berechneten f-Faktoren und gemessenen $\langle \sigma \rangle$ -Werten anderer Autoren. Es ist möglich, mit dieser Methode f-Faktoren zu bestimmen, sofern $\langle \sigma \rangle$ -Werte mit Hilfe anderer Methoden gewonnen werden. Darüber hinaus ermöglicht das vorliegende Verfahren Untersuchungen











Abb. 7. α_0 als Funktion von B^2 für 7,5 keV-Neutronen in Natururan

Tabelle 2. Veraleich der gemessenen σ^{eff} -Werte mit $\langle \sigma \rangle$ -Werten anderer Autoren

Material	Neutronen- energie [keV	$\sigma_a^{\text{eff}}[b]$	f _a [13]	$\frac{\sigma_a^{\text{eff}}}{f_a} [b]$	$\langle \sigma_a \rangle [b]$	$\sigma_{\mathrm{tr}}^{\mathrm{eff}}[b]$	ħ [13]	$\frac{\sigma_{\rm tr}^{\rm eff}}{f_l}$ [b]	$\langle \sigma_{ m tr} \rangle [b]$
Pb	30 ± 6	_	. —			$10,1\pm0,2$	1,00	10,1	10,0 [18]
U ²³⁸	30 ± 6	0,50±0,03	0,92	0,54	0,38 [19] 0,47 [20] 0,50 [17] 0,53 [3]	$14,65\pm0,5$	0,97	15,1	13,6 [21] 13,4 [17] 13,7 [22] 12,0 [23]
U^{238}	7,5 \pm 0,8	$0,40\pm0,025$	0,65	0,61	0,63 [20] 0,64 [17]	$11,92\pm0,4$	0,75	15,9	15,8 [22] 15,3 [17]

434

der Resonanzselbstabschirmung in Materialmischungen. Hierbei kann man den Resonanzabsorber mit einem reinen Potentialstreuer (z.B. Blei) verdünnen und die Abschirmung als Funktion des Verdünnungsgrades messen, oder den gegenseitigen Einfluß zweier Resonanzabsorber (z. B. U²³⁸ und Pu²³⁹) studieren.

Anhang

Es soll nunmehr die Moderations-Korrekturfunktion F(t), mit der die gemessenen Abklingkurven korrigiert werden müssen, berechnet werden. Bezeichnen wir die über viele Resonanzen gemittelte Neutronendichte mit n(u,t), wobei u die Lethargie bedeutet, so

gilt für die Gesamtdichte $N(t) = \int_{0}^{\infty} n(u,t) \cdot du$ folgende Beziehung:

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\int_{0}^{\infty} \alpha(u) \cdot n(u,t) \cdot du, \qquad (A.1)$$

mit

$$\alpha(u) = v \Sigma_{\alpha}^{\text{eff}}(u) + D_0(u) \cdot B^2 + C B^4.$$
 (A.2)

Mittelung von $\alpha(u)$ über die Neutronendichte n(u,t) liefert

$$\overline{\alpha}(t) = \frac{\int_{0}^{\infty} \alpha(u) \cdot n(u,t) \cdot du}{\int_{0}^{\infty} n(u,t) \cdot du}.$$
 (A.3)

Somit läßt sich Gl. (A.1) auch in der folgenden Form schreiben:

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\bar{\alpha}(t) \cdot N(t). \qquad (A.1')$$

Die Einführung einer spektrumgemittelten zeitabhängigen Neutronenabklingkonstante $\bar{\alpha}(t)$ ist physikalisch sinnvoll, da nach Injektion eines angenähert monoenergetischen Neutronenpulses in einem schweren Streumedium das Neutronenspektrum n(u, t) während der Moderation stets ein scharf ausgeprägtes Maximum in der Nähe einer mittleren, mit der Zeit ansteigenden Lethargie $\overline{u}(t)$ besitzt.

$$\bar{u}(t) = \frac{\int_{0}^{\infty} u \cdot n(u,t) \cdot du}{\int_{0}^{\infty} n(u,t) \cdot du}.$$
 (A.4)

Bei Injektion eines exakt monoenergetischen Neutronenpulses läßt sich das Neutronenspektrum n(v,t)während der Moderation in guter Näherung durch eine Gaußverteilung beschreiben [24]. Bei Injektion eines experimentell bedingten nicht exakt monoenergetischen Neutronenpulses mit einer praktisch gaußförmigen Geschwindigkeitsverteilung (Halbwertsbreite Γ) überlagert sich diese infolge Moderation mit obiger Verteilung. Das mittlere Lethargieschwankungsquadrat ergibt sich dann zu

mit

$$s = \frac{\Gamma}{\sqrt{2\ln 2}}.$$

 $\overline{(u-\overline{u})^2} = \frac{8}{3 \cdot A} + \frac{4s^2}{v_h^2}$

Eine Taylor-Entwicklung von $\alpha(u)$ um \overline{u} liefert

$$\alpha(u) = \alpha(\overline{u}) + (u - \overline{u}) \cdot \alpha'(\overline{u}) + \frac{(u - \overline{u})^2}{2} \alpha''(\overline{u}) + \cdots (A.6)$$

Wird Gl. (A.6) in (A.3) eingesetzt, so erhält man wenn man das quadratische Glied nach Gl. (A.5) abgeschätzt:

$$\bar{\alpha}(t) = \alpha \left(\bar{u}(t) \right) \cdot \left\{ 1 + \left[\frac{4}{3}A + 2s^2 / v_0^2 \right] \alpha''(\bar{u}) / \alpha(\bar{u}) \right\}.$$
(A.7)

Nun ist der in eckigen Klammern stehende Ausdruck bei den vorliegenden Experimenten $(I/v_0 \leq 0.2)$ stets $< 2 \cdot 10^{-2}$ und wegen der im interessierenden Energiebereich recht glatt verlaufenden Wirkungsquerschnitte ist $\alpha''(\bar{u})/\alpha(\bar{u}) \leq 0.5$, somit gilt

$$\bar{\alpha}(t) = \alpha \left(\bar{u}(t) \right) \tag{A.8}$$

und mit Gl. (A.1')

$$N(t) \sim \exp - \int_{0}^{t} \alpha \left(\overline{u}(t) \right) dt.$$
 (A.9)

Die Entwicklung von $\alpha(\bar{u}(t))$ um $\bar{u}=0$ liefert¹

$$\alpha\left(\bar{u}(t)\right) = \alpha_0 + \alpha'(0) \cdot \left(\frac{d\,\bar{u}}{d\,t}\right)_{t=0} \cdot t + \cdots . \quad (A.10)$$

Für das unendliche Medium gilt [25]

$$\left(\frac{d\,\overline{u}}{dt}\right)_{t=0} = \xi \Sigma_s^{\text{eff}} v_0 \tag{A.11}$$

mit ξ = mittlere Lethargiezunahme pro Stoß

$$\xi \approx rac{2}{A+2/3}.$$

In einem endlichen Medium ist - wenn wie im vorliegenden Fall das Neutronenfeld nicht exakt monoenergetisch ist - diese Lethargiezunahme etwas größer, da bevorzugt schnelle Neutronen das Streumedium verlassen. Berücksichtigt man diesen Effekt, so erhält man über eine elementare Behandlung

$$\left(\frac{d\,\overline{u}}{dt}\right)_{t=0} = \xi \, \Sigma_s^{\text{eff}} \cdot v_0 - \frac{2\,\Delta^2}{v_0^2} \cdot \alpha'(0) \,. \qquad (A.11')$$

 \varDelta ist die Streuung (Standardabweichung) der praktisch gaußförmigen Geschwindigkeitsverteilung der Neutronen im Medium, die sich aus Gl. (A.5) mit

 $\overline{(u-\overline{u})^2} = \frac{4}{v_0^2} \, \overline{(\overline{v}-v)^2}$

ergibt:

 $\frac{\Delta^2}{v_0^2} = \left(\frac{2}{3A} + \frac{s^2}{v_0^2}\right).$ (A.12)

Gl. (A.9) liefert mit Gl. (A.10) und Gl. (A.11')

 $N(t) \sim \exp -$

$$-\left\{\alpha_{0}\cdot t+\alpha'(0)\left[\xi \Sigma_{s}^{\text{eff}}v_{0}-\frac{2\varDelta^{2}}{v_{0}^{2}}\alpha'(0)\right]\frac{t^{2}}{2}\right\}.$$
(A.13)

Wird jetzt eine Korrekturfunktion F(t) wie folgt definiert

$$F(t) = \exp\left\{-\alpha'(0) \left[\xi \Sigma_s^{\text{eff}} v_0 - \frac{2\Delta^2}{v_0^2} \alpha'(0)\right] \frac{t^2}{2}\right\}, (A.14)$$

so erhält man²

(A.5)

$$\frac{N(t)}{F(t)} \sim e^{-\alpha_0 t}.$$
 (A.15)

Die Moderationskorrekturfunktion F(t) hängt neben der vom Experiment her bekannten Ge-

¹ Die Mitberücksichtigung weiterer Glieder ändert über F(t) die Abklingkonstante um weniger als 0,5%. ² Eine kleine Korrektur bezüglich der geringen Abweichung der Li-Detektoren vom 1/v-Charakter bei 30 keV wird zusätzlich durchgeführt.

schwindigkeitsbreite des Neutronenfeldes - auch von den Querschnitten Σ_s^{eff} und Σ_a^{eff} ab, die die Messung ja erst liefern soll. Nun brauchen jedoch zum Zwecke der Korrektur diese Querschnitte nur in grober Näherung bekannt zu sein: Eine Ungenauigkeit von Σ_s^{eff} bzw. Σ_a^{eff} von 10% führt über F(t) zu einer solchen von α_0 um weniger als 1%. Hierdurch ist die Möglichkeit zu folgendem Iterationsverfahren gegeben: 1. Korrektur der gemessenen Abklingspektren mit einem "Start"-F(t) (berechnet aus Kerndaten nach SCHMIDT [17] und ABAGJAN [13]) und Bestimmung der Quer-schnitte Σ_{tr}^{eff} bzw. Σ_s^{eff} und Σ_a^{eff} aus $\alpha_0 = \alpha_0(B^2)$. 2. Erneute Korrektur der Abklingkurven mit einem F(t), das aus den gemessenen Querschnitten berechnet wird, usw. Bei den vorliegenden Messungen braucht diese Iteration nicht durchgeführt zu werden, da sich die gemessenen Querschnitte um weniger als 10% von den oben erwähnten Kerndaten unterscheiden (vgl. Tabelle 2). Die Größe $(v \cdot \Sigma_a^{\text{eff}})'$ hat nur einen sehr geringen Einfluß auf F(t) und wird mit ausreichender Genauigkeit aus Tabellenwerten bestimmt. Bei der Berechnung von F(t) ist zu beachten, daß t=0 der Zeit der Pulsinjektion entspricht. Diese ist bestimmt durch die Entstehungszeit der Neutronen am Target (im Abklingspektrum markiert durch den Peak der vom Target kommenden prompten y-Quanten) plus Neutronenflugzeit vom Target zum Blockmittelpunkt.

Herrn Prof. Dr. BECKURTS danken wir für die Anregung zu dieser Arbeit und für wertvolle Diskussionen.

Literatur. [1] GIBBONS, J. H., R. L. MACKLIN, P. D. MILLER, and J. H. NEILER: Phys. Rev. 122, 182 (1960). — [2] HARRIS, K. K., H. A. GRENCH, R. G. JOHNSON, and F. J. VAUGHN: Nuclear Phys. 69, 37 (1965). — [3] TOLSTIKOV, V. A., L. E. SHERMAN i YU. YA. STAVISSKII: Atomnaya Energ. 15, 414 (1963) bzw. Übersetzung in J. Nuclear Energy, Parts A/B, 18, 599 (1964). — [4] MOXON, M. C., and E. R. RAF: Nuclear Instr. and Meth. 24, 445 (1963). — [5] BELANOBA, T. S.: Atomnaya Energ. 8, 549 (1960). — [6] SCHMITT, H. W., and C. W. COOK: Nuclear Phys. 70, 202 (1960). — [7] NIKOLAEV, M. N., V. V. FILIPPOV, and J. I. BONDARENKO: Physics of fast and intermediate reactors. IAEA, Vienna 1962. [8] Zum Beispiel KÜCHLE, M.: Nukleonik 2, 131 (1960). ARAI, E., u. M. KÜCHLE: Nukleonik 7, 416 (1965). — [9] SJÖ-STRAND, N. G.: Arkiv Fysik 15, 147 (1959). — [10] BECKURTS, - [9] Sjö-K. H.: Interner Arbeitsbericht (1964); siehe auch Pulsed neutron research. Proceedings of a Symposium, Karlsruhe, vol. I, p. 3 (1965), IAEA, Vienna. — [17] BEGHIAN, L. E., N. C. RASMUSSEN, R. T. THEWS, and J. WEBER: Nuclear Sci. and Eng. 15, 375 (1963); — BEGHIAN, L. E., A. E. PROFIO, J. WE-BER, and S. WILENSKY: Nuclear Sci. and Eng. 17, 82 (1963). -[12] BEGHIAN, L. E., and S. WILENSKY: Pulsed neutron research. Proceedings of a Symposium, Karlsruhe, vol.II, p. 511 (1965), IAEA, Vienna. — [13] ABAGJAN, L. P., N. O. BAZAZ-JANC, I. I. BONDARENKO U. M. N. NIKOLAEV: Gruppenkonstanten schneller und intermediärer Neutronen für die Berechnung von Kernreaktoren. Physikalisch-Energetisches Institut Staatliches Komitee für die Nutzung der Atomenergie in der UdSSR, Übersetzung aus dem Russischen KFK-tr-144. - [14] DURAND, P., P. GIRAUD, G. BRUDERMÜLLER, and B. REUTER: Nuclear electronics. Proceedings of the Internat. Symposium, Paris 1963, electronics. Proceedings of the Internat. Symposium, Paris 1963, S. 651. — [15] MARION, J. B., and J. L. FOWLER: Fast neutron physics, part I, p. 177. London and New York: Interscience 1960. — [16] MOORE, R. M., and R. K. ZEIGLER: LA 2346 (1959). — [17] SCHMIDT, J. J.: Neutron cross sections for fast reactor materials, part II and III (1962) KFK 126 (EANDC-E-35 U). — [18] HUGHES, D. J., and R. B. SCHWARTZ: Neu-tron cross sections BNL 325. — [19] HANNA, R., and B. ROSS: J. Nuclear Energy 8, 197 (1959). — [20] BILPUCH, C., Z. WEtron cross sections BNL 325. — [19] HANNA, R., and B. ROSS: J. Nuclear Energy 8, 197 (1959). — [20] BILFUCH, C., Z. WE-STON, and H. NEWSON: Ann. of Phys. 10, 445 (1960). — [21] ADATR, R. K., H. H. BARSCHALL, C. K. BOCKELMANN, E. R. GRAVES, R. L. HENKEL, and R. E. PETERSON: LA.-1060 (1950). — [22] UTTLEY, C. A.: EANDC-UK-35 L (1964). — [23] TA-BONY, R. H., K. K. SETH, and E. G. BILFUCH (im Druck). — [24] Friegar S. Handbach den Physik Rd XVX VIII/2 S [24] FLÜGGE, S.: Handbuch der Physik, Bd. XXX VIII/2. S. 239. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1959.- [25] BEK-KURTS, K. H., and K. WIRTZ: Neutron physics. Berlin-Heidelberg-New York: Springer 1964.

> Dr. HORST MIESSNER und Dr. EIICHI ARAI Institut für Angewandte Kernphysik Kernforschungszentrum Karlsruhe 75 Karlsruhe

ς

Technical Notes

Measurements of Effective (Self-shielded) Neutron Cross Sections by a Fast Pulsed Method*

Effective capture and transport cross sections of uranium and lead, which are very important for fast reactor design, have been measured in the low keV region. In this energy range the resonances of the cross sections of fertile and fissile materials are separated but are still experimentally unresolved.

For the following measurements the pulsed method which has been proved for measuring capture and transport cross sections in the thermal energy range is extended to the keV region. Beghian et al.¹ used the fast pulsed method to determine inelastic cross sections in lead, uranium, bismuth, and iron in the MeV range.

In the present work, a short burst (1 or 10 nsec) of nearly monoenergetic neutrons with energies below the threshold for inelastic scattering is injected into assemblies of lead and uranium (parallelepipeds of 10- to 20-cm side length) and the decay of the neutron field in the block is measured. For very heavy materials, moderation effects are negligible, so that the diffusion process can be described by usual one-group theory and the neutron field decays exponentially with a time constant

$$\alpha_0 = v_0 \cdot \Sigma_a^{\text{eff}} + \frac{v_0}{3 \cdot \Sigma_{\text{tr}}^{\text{eff}}} B^2 + CB^4 \quad , \tag{1}$$

with

 v_0 = injection velocity

 B^2 = buckling of the assembly

 $C = \frac{v_0}{45 \cdot \Sigma_t^3}$ correction term due to transport theory

 Σ_t = macroscopic total cross section.

The detailed treatment of the pulsed neutron field including the resonance structure of the cross sections leads to self-shielded cross sections which are identical with effective values defined by Abagjan et al.²

²L. P. ABAGJAN, N. O. BAZAZJANC, I. I. BONDARENKO, and M. N. NIKOLAEV, "Group Constants of Fast and Intermediate Neutrons for the Calculation of Nuclear Reactors," National Committee for the Use of Atomic Energy in the USSR, Physical Energetic Institute, Obninsk, KFK Report tr-144 (1963).

$$\Sigma_{a}^{\text{eff}} = \left\langle \frac{\left\langle \Sigma_{a} \right\rangle}{\left\langle \frac{1}{\Sigma_{t}} \right\rangle} = f_{a} \cdot \left\langle \Sigma_{a} \right\rangle$$
(2)

$$\Sigma_{tr}^{eff} = \left\langle \frac{\left\langle \frac{1}{\Sigma_{t}} \right\rangle}{\left\langle \frac{1}{\Sigma_{t} \cdot \Sigma_{tr}} \right\rangle} = f_{t} \cdot \left\langle \Sigma_{tr} \right\rangle \quad . \tag{3}$$

The brackets designate averages over an energy interval that is large enough to contain many resonances but is smaller than the average energy loss per elastic collision.

Values of the self-shielding factors f_a and f_t have been calculated for many nuclides².

Equation (1) is exactly valid only in the absence of moderation effects. It can be shown that, even for materials as heavy as lead and uranium, the moderation is not negligible. According to Eq. (1), the moderation causes a decrease of α with v during the decay, which is therefore not exactly exponential. However, it is possible to calculate the moderation effect and to eliminate it from each decay spectrum. This treatment makes use of the fact that in the case of heavy materials after pulse injection of nearly monoenergetic neutrons the spectrum remains sharp during moderation and its maximum lies near the spectrum-averaged lethargy $\overline{u}(t)$, which increases with time. It can be shown that the decay process can be described as follows:

$$N(t) \sim \exp\left\{-\int_0^t \alpha[\overline{u}(t)] dt\right\} , \qquad (4)$$

where N(t) is the total (energy-integrated) neutron density which is measured by a 1/v detector. A Taylor expansion of $\alpha(\overline{u})$ about $\overline{u} = 0$, which corresponds to the injection energy, yields after integration,

$$N(t) \sim \exp\left[-(\alpha_0 \cdot t + a \frac{t^2}{2} + \ldots)\right]$$
 , (5)

where α_0 is the decay constant at $\overline{u} = 0$ and corresponds to the decay constant that would appear in the absence of moderation. Using a correction function

$$F(t) = \exp\left(-a \frac{t^2}{2}\right) \quad , \tag{6}$$

moderation effects are eliminated in the following way:

$$\frac{N(t)}{F(t)} \sim \exp\left(-\alpha_0 t\right) \quad , \tag{7}$$

where F(t) can be calculated from the buckling, the injection velocity, the mass number of the material and the cross sections. However, for this correction, the cross sections need only be known to first order.

If α_0 is measured as a function of the buckling, the cross sections Σ_a^{eff} and Σ_{tr}^{eff} can be obtained according

^{*}This work was performed within the framework of the association EURATOM-Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. in the field of fast reactor development.

¹L. E. BEGHIAN, N. C. RASMUSSEN, R. T. THEWS, and J. WEBER, Nucl. Sci. Eng., 15, 375 (1963). L. E. BEGHIAN, A. E. PROFIO, J. WEBER, and S. WILENSKY, Nucl. Sci. Eng., 17, 82 (1963). L. E. BEGHIAN and S. WILENSKY, "Pulsed Neutron Research," Proc. Symp., Karlsruhe, IAEA, Vienna, II, 511 (1965).

to Eq. (2). The big advantage of this method is that it yields absolute values of the cross sections and no flux determination is necessary.

The neutrons are produced by a pulsed 3-MeV van de Graaff (pulse length 1 or 10 nsec, repetition rate 1 or 0.5 Mc/s). The ⁷Li (p,n) ⁷Be reaction yields (30 ± 6) keV neutrons near threshold and the ${}^{45}Sc(p,n){}^{45}Ti$ reaction neutrons of (7.5 ± 0.8) keV at the lowest resonance of the (p,n) cross section.

The detector is either a ⁶Li-loaded glass scintillator (time resolution $\lesssim 8$ nsec) or a LiI crystal (time resolution \lesssim 20 nsec) in connection with 56-AVP multipliers. The latter detector is used for the measurements on uranium because of its better discrimination against gamma radiation of the radioactive decay.

Figure 1 shows a typical decay curve of a 30-keV neutron field in uranium. An inspection of the decay curve after background substraction shows that it is not exponential. But the division of the background corrected spectrum by F(t) leads to a decay that is exactly exponential over about 3 decades. However, for the evaluation of α_0 , only about 2 decades are used. Within this region, F(t) is smaller than 2 and the accuracy of the Taylor expansion is good enough. Though F(t) is rather large, the difference of



Fig. 1. Decay of a 30-keV neutron field in a $15.3 \times 15.3 \times 15.2$ cm³ block of natural uranium.



Fig. 2. Decay constant vs buckling for 7.5-keV neutrons in natural uranium.

the slopes of corrected and uncorrected curve (if we restrict ourselves here to the nearly exponential region) is less than 10%, corresponding to an α correction of the same order.

Figure 2 is a plot of an α vs B^2 curve for uranium at a neutron energy of 7.5 keV. The full curve is a leastsquares fit according to Eq. (1). Since C is very small. its theoretical value is used.

Table I shows the measured effective cross sections. Since no similar experimental values exist at present^a, the measured effective cross sections can be compared with $<\!\!\sigma\!\!>$ values of other authors only after division by the calculated self-shielding factors² according to Eqs. (2) and (3). Lead shows no resonance self-shielding in the keV region (the number of resonances is too small) and the f factor is equal to unity. The capture cross section (≈3 mb)

^aEffective total cross sections between 0.3 and 2.9 MeV were measured by M. N. Nikolaev, V. V. Filippov, and I. I. Bondarenko, "Physics of Fast and Intermediate Reactors," IAEA, Vienna (1962).

Material	Neutron energy (keV)	σ _a ^{eff} (b)	<i>fa</i> Ref. 2	$\frac{\sigma_a^{\text{eff}}}{f_a}$ (b)	< <i>σ</i> _a > (b)	σ _{tr} eff (b)	<i>f_t</i> Ref. 2	$\frac{\sigma_{\rm tr}^{\rm eff}}{f_t}$ (b)	< $\sigma_{tt}>$ (b)
Pb	30 ±6	-	-	-	-	10.1 ± 0.2	1.00	10.1	10.0 Ref. 3
²³⁸ U	30 ±6	0.50 ± 0.03	0.92	0.54	0.38 Ref. 4 0.47 Ref. 5 0.50 Ref. 6 0.53 Ref. 7	14.65 ± 0.5	0.97	15,1	13.6 Ref. 8 13.4 Ref. 6 13.7 Ref. 9 12.0 Ref. 10
²³⁸ U	7.5 ± 0.8	$0.40\pm0.02_5$	0.65	0.61	0.63 Ref. 5 0.64 Ref. 6	11.92 ± 0.4	0.75	15.9	15.8 Ref. 9 15.3 Ref. 6

TABLE I Comparison of Measured $\sigma^{eff}Values$ with $<\!\!\sigma\!\!>\!Values$ of Other Authors

³D. J. HUGHES and R. B. SCHWARTZ, "Neutron Cross Sections." BNL-325, 2nd ed. Brookhaven National Laboratory (1958).

⁴R. HANNA and B. ROSS, J. Nucl. Energy, 8, 197 (1959).

⁵E. G. BILPUCH, L. W. WESTON, H. W. NEWSON, Ann. Phys. 10, 445 (1960).

⁶J. J. SCHMIDT, "Neutron Cross Sections for Fast Reactor Ma-terials," KFK Report 120 (EANDC-E-35U), Kernforschungszentrum Karlsruhe (1962). ⁷V. A. TOLSTIKOV, L. E. SHERMAN, and YU. YA. STAVISSKII,

Atomnaya Energya, 15, 414 (1963).

⁸R. K. ADAIR, H. H. BARSCHALL, C. K. BOCKELMANN et al. L. A.-1060 (1950).

°C. A. UTTLEY, EANDC-UK-35L, AERE Harwell (1964).

¹⁰R. H. TABONY, K. K. SETH, and E. G. BILPUCH, to be published; quoted in J. R. STEHN, M. D. GOLDBERG, R. WIENER-CASHMAN, S. F. MUGHABGHAB, B. A. MAGURNO, and V. M. MAY, *Neutron Cross Sections*, Vol. III, "Z = 88 to 98", BNL 325, 2nd ed., Suppl.: No. 2, Control of the section of p. 92-0-1, Brookhaven National Laboratory (1965).

TECHNICAL NOTES

is too small to be measured by this method. The transport cross sections conforms very well with other measurements. For uranium, the resonance self-shielding is still small at 30 keV ($f \approx 1$), but is already considerable at 7.5 keV. The agreement of the measured effective capture cross sections after division by f_a is good both for 30 and 7.5 keV. The transport cross section at 7.5 keV agrees very well with other measurements, but at 30 keV this cross section is about 10% higher than other values.

The effective cross sections measured by the fast pulsed method agree with values computed from calculated f factors and $\langle \sigma \rangle$ values measured by other authors. The present method can be used to determine f factors, if $\langle \sigma \rangle$ values are obtained by other methods. Further, it is

possible to investigate the self-shielding in mixtures of materials, e.g., a resonance absorber $\binom{233}{3}$ U) and a potential scatterer (*Pb*), which permits the study of dilution effects, or two resonance absorbers $\binom{238}{3}$ U and $\binom{233}{2}$ Pu).

E. Arai** H. Miessner K. H. Beckurts

Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Angewandte Kernphysik Karlsruhe, Germany Received April 11, 1966

**On leave from Tokyo Institute of Technology.

the fill an estimate