

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

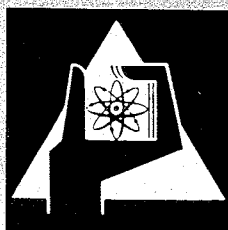
April 1969

KFK 966  
EUR 4172 d  
EANDC(E)-117"U"

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Aktueller Stand der physikalischen Kenntnis der wichtigsten  
Reaktorkerndaten

J. J. Schmidt



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

April 1969

KFK-966  
EUR-4172 d  
EANDC(E)-117"U"

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Aktueller Stand der physikalischen Kenntnis  
der wichtigsten Reaktorkerndaten\* +

von

J.J. Schmidt

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

---

\* Diese Arbeit wurde im Rahmen der Assoziation zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft und der Gesellschaft für Kernforschung mbH. Karlsruhe auf dem Gebiet der schnellen Reaktoren durchgeführt.

+ Vortrag gehalten auf der Reaktortagung des Deutschen Atomforums e.V. in Frankfurt, April 1969.



## Einleitung

Meinen Überblick über den aktuellen Stand der physikalischen Kenntnis der wichtigsten Reaktorkerndaten möchte ich mit einem kurzen historischen Rückblick einleiten. Etwa das Jahr 1960 markiert eine Wende, nämlich den Übergang von überwiegender Beschäftigung mit thermischen Reaktoren zu seitdem immer mehr sich verstärkender Erforschung und Entwicklung schneller Reaktoren. Auf dem Sektor der Reaktorkerndaten markiert darum dieses Jahr den Übergang von dem sehr eng begrenzten thermischen Energiebereich in den sehr viel größeren Energiebereich schneller Reaktoren, der nun von thermischen Energien bis zu etwa 15 MeV reicht. Seitdem gilt es, die Daten für sämtliche Neutronenprozesse in feinem Energie- und Winkeldetail in diesem mehr als 10 Zehnerpotenzen überdeckenden Energiebereich für einen hohen Prozentsatz natürlicher und künstlich erzeugter Elemente und Isotope zu erfassen und für die Reaktorphysik und -technik bereitzustellen.

Der wachsende Datenbedarf führte, unter der Förderung von internationalen Gremien wie dem EANDC (Europäisch-Amerikanisches Kerndatenkomitee), zu einem explosionsartigen Anwachsen an Experimentiereinrichtungen, wie Linear- und Van de Graaff-Beschleunigern, zur Messung von Neutronenwirkungsquerschnitten und anderen Neutronenkerndaten und zu einer daraus folgenden lawinenartig anwachsenden experimentellen Datenproduktion. Parallel dazu ist die rasche Entwicklung der Datenverarbeitung und der elektronischen Rechenmaschinen zu sehen, die ihrerseits die Entwicklung immer komplizierterer und detaillierterer Reaktorrechenprogramme erlaubte und förderte.

Diese Entwicklungen brachten primär ein schwieriges Organisationsproblem mit sich: Wie ließ sich diese Fülle der mikroskopischen Meßdaten in möglichst allgemeiner, dabei rascher und effektiver Weise für die Rechnungen der Reaktortheorie und die technische Reaktorplanung nutzbar machen? In Karlsruhe wurde dieses Organisationsproblem auf folgende Weise in den letzten Jahren gelöst (siehe Abb. 1).

Diese Lösung wird inzwischen auch von einer Reihe deutscher und benachbarter ausländischer Industriefirmen benutzt. Ganz ähnliche Entwicklungen haben sich in englischen, amerikanischen etc. Labors vollzogen. Im übrigen war eine umfangreiche internationale Zusammenarbeit dazu notwendig [1,7].

Den Ausgangspunkt bilden die mikroskopischen Meßdaten; ihre heutige Größenordnung beträgt  $10^6 - 10^7$  Datenpunkte. Diese Meßdaten werden heute zunächst durch vier über die Welt verteilte internationale Datenzentren zentral erfaßt und mit Datenspeicher- und -abfrageprogrammen in Computern zur Weiterverwendung bereitgestellt (Compilation). Es handelt sich um Zentren in Obninsk in Rußland, bei der IAEA in Wien, in Saclay in Frankreich und in Brookhaven in den USA. Diese Daten werden von Auswertungsgruppen übernommen, kritisch bewertet, ausgesondert, gemittelt und mit Hilfe von Kerntheorie und Kernsystematik ergänzt und zu einem im Hinblick auf Reaktorrechnungen vollständigen Computerfile von sogenannten "Bestkerndaten" verarbeitet (Evaluation); in Karlsruhe heißt dieser File KEDAK-Band. Dieses KEDAK-Band dient nun als Basis zur Erzeugung von Gruppenkonstanten und Abschirmfaktoren; das geschieht in Karlsruhe mit dem Programmsystem MIGROS. Die Ausgabe des MIGROS-Systems bildet die nukleare Dateneingabe für Rechenprogramme der Reaktorphysik; diese sind in Karlsruhe im Programmsystem NUSYS zusammengeschlossen. Die Ausgabe des NUSYS-Systems schließlich bildet die physikalische Grundlage für die technische Reaktorplanung.

Nun sei kurz in einigen Beispielen angemerkt, für welche Reaktormaterialien primär welche Typen von Neutronenreaktionen interessieren. Die Frage der Materialien ist unmittelbar beantwortet. Es handelt sich natürlich in erster Linie um die Hauptspalt- und Brutisotope wie  $\text{Pu}^{239}$ ,  $\text{U}^{235}$ ,  $\text{U}^{233}$ ,  $\text{U}^{238}$  und  $\text{Th}^{232}$  und die daraus sich aufbauenden radioaktiven Folgekerne, Strukturmaterialien wie Fe, Ni, V oder Zr, Absorberstabmaterialien wie B, Hf oder Ta, Kühlmaterialien wie  $\text{H}_2\text{O}$ -Dampf, He- oder  $\text{CO}_2$ -Gas oder Na, Brennstoffverbindungsbestandteile wie C, N oder O, Moderatoren wie  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{D}_2\text{O}$ , Be oder Graphit usw. Was Reaktionstypen angeht, so bestimmen sich die physikalischen Eigenschaften eines Reaktors wie Vermehrungsfaktor oder Brutrate in erster Linie außer durch Leakage durch Spalt- und Absorptionsprozesse, Neutronenenergiespektren in erster Linie außer durch Leakage durch elastische und unelastische Neutronenbremsung. Prozesse wie  $(n,2n)$  können zur Erhöhung des Vermehrungsfaktors beitragen wie z.B. im Schnellspaltfaktor von Be.  $(n,\alpha)$ -Prozesse haben eine besonders wichtige praktische Bedeutung erlangt durch den Aufbau von He in und die daraus resultierende Versprödung von Struktur- und Absorbermaterialien.

Diese wenigen Beispiele schon zeigen auf der einen Seite, daß Datenauswertung (Evaluation) für Reaktoren immer das Ganze von Reaktormaterialien, Neutronenreaktionen und Energiebereich zwischen 0 und 15 MeV im Auge haben muß. Auf der anderen Seite weisen sie die neutronenphysikalischen Eigenschaften der primären Spalt- und Brutkerne als für die physikalischen Merkmale von Reaktoren dominant aus. Es handelt sich im einzelnen um Spalt- und Einfangquerschnitte, prompte Spaltneutronenzahlen und daraus abgeleitete Größen wie  $\eta$  und  $\alpha$ . Die Genauigkeitsanforderungen an diese Daten sind für thermische Reaktoren heute recht gut erfüllt, jedenfalls bei weitem besser als für schnelle Reaktoren. Aus diesen Gründen werde ich mich mit einem aktuellen Überblick über Spalt- und Einfangdaten einiger U- und Pu-Isotope im Energiebereich schneller Reaktoren begnügen.

### 1. $\alpha$ -Pu<sup>239</sup>

Die Abbildungen 2 und 3 zeigen den heutigen Stand der Kenntnis der Energieabhängigkeit von  $\alpha = \sigma_{\gamma} / \sigma_f$  für Pu<sup>239</sup> im keV-Bereich. Den Ausgangspunkt des  $\alpha$ -Pu<sup>239</sup>-Problems bildeten die hohen  $\alpha$ -Messungen von Schomberg et al., die bekanntlich auf der IAEA-Tagung über die Physik schneller Reaktoren in Karlsruhe im Oktober 1967 vorgetragen wurden [2]. Diese damals noch vorläufigen Meßwerte lagen im Bereich von etwa 1-10 keV um ein Mehrfaches höher als die bis dahin für richtig gehaltenen alten KAPL-Werte von 1955 [3-5]. Diese KAPL-Werte waren das Ergebnis langjähriger Bestrahlungen von Meßproben in Hanford-Reaktoren und von Reaktivitätskoeffizientmessungen in intermediären kritischen Anordnungen in verschiedenen Neutronenspektren und galten bis dahin als zuverlässig. Die so große Diskrepanz zwischen den KAPL- und den Schomberg- $\alpha$ -Werten und der bekannte negative Einfluß der hohen Schomberg-Werte auf das Brutverhalten aller schnellen Reaktortypen [6] veranlaßte alsbald eine weltweite Aktivität in Messung und Auswertung von  $\alpha$ (Pu<sup>239</sup>).

Die Abbildungen 2 und 3 zeigen eine etwas verwirrende Fülle von z.T. diskrepanten Meß- und theoretischen Daten. Auf die einzelnen dahinter stehenden Untersuchungen wird weiter unten näher eingegangen. Zwei wichtige und mindestens qualitativ feststehende Ergebnisse seien vorweggenommen:

1. Im Bereich von etwa 100 eV bis etwa 10 keV ist  $\alpha$ (Pu<sup>239</sup>) definitiv höher als die früheren KAPL-Werte, und zwar in der Größenordnung von 50% und mehr.
2. Alle neueren Untersuchungen ergeben übereinstimmend periodische Schwankungen von  $\alpha$  als Funktion der Neutronenenergie, die im Bereich 100 eV bis 2 keV aus den Abbildungen 2 und 3 deutlich ersichtlich sind. Diese Schwankungen und insbesondere das Auftreten der hohen

$\alpha$ -Werte werden in allerjüngster Zeit physikalisch recht gut verstanden. Sie sind bedingt durch das physikalische Phänomen der sogenannten "intermediären Unterschwellenspaltung". Die theoretische Voraussage und Erklärung dieses Phänomens geht auf Strutinsky [12] zurück. Sie stellt eine wichtige Modifikation dar für die konventionelle Vorstellung vom Spaltvorgang, die durch das klassische Tröpfchenmodell bestimmt ist [13]. Die klassische Tröpfchenmodellvorstellung von der Spaltbarriere und seine Modifikation durch Strutinsky sind qualitativ in Abbildung 4 veranschaulicht und sind zunächst im folgenden in stark vereinfachter Form erläutert.

In Abbildung 4 ist aufgetragen der Energieinhalt eines durch Neutroneneinfang gebildeten schweren Zwischenkerns, z.B. des  $\text{Pu}^{240}$ -Kerns, gebildet durch Neutroneneinfang in  $\text{Pu}^{239}$ , als Funktion eines Deformationsparameters  $\beta$ , der den Übergang von der Kugelform über die Grundzustandsdeformation des Zwischenkerns  $\beta_0$  zu immer stärkeren hantelartigen Verformungen bis zum schließlichen Zerreißen in zwei Spaltbruchstücke entsprechend dem Spaltvorgang beschreibt. Als Energienullpunkt ist die Gesamtenergie des Zwischenkerns im Grundzustand  $\beta_0$  gewählt. Das Tröpfchenmodell betrachtet bekanntlich den Energieinhalt eines Kerns aufgebaut aus einer Oberflächenspannung, die den Kern zusammenzuhalten sucht, und aus der elektrostatischen Abstoßung der Kernprotonen, die den Kern auseinanderzureißen sucht. Im Normalzustand  $\beta_0$  des Kerntropfens halten sich diese Kräfte gerade die Waage, der Kerntropfen ist stabil. Energiezufuhr versetzt den Tropfen in hantelförmige Schwingungen um seine Normallage. Mit wachsender Energiezufuhr erreicht man die Spaltschwelle, d.h. den kritischen Punkt, an dem die elektrostatischen Abstoßungskräfte die Oberflächenkräfte so stark überwiegen, daß sie den Tropfen in zwei Teile zerreißen. Das Tröpfchenmodell berechnet den Energieinhalt des "Kerntropfens", also die Summe aus elektrostatischen und Oberflächenkräften, als Funktion der Kerndeformation  $\beta$  und sagt für die Spaltbarriere eine Form voraus, die in Abbildung 4 durch die glatt durchgezogene Kurve dargestellt ist.

Soweit zur Vorstellung des Tröpfchenmodells vom Spaltvorgang. Sicher wird das Tröpfchenmodell in dieser sehr vereinfachten Anfangsgestalt der ganzen Komplexheit des Spaltvorgangs nicht gerechnet; eines der



bleibenden Verdienste des Tröpfchenmodells bleibt aber zweifellos, mit dieser sehr einfachen Vorstellung von den Kernkräften die Erfahrung erklärt zu haben, daß Spaltung durch Zufuhr von Energien in der Größenordnung der Neutronenbindungsenergie erst bei den uns bekannten schweren Kernen möglich ist.

Aus Abbildung 4 lassen sich auch noch die Begriffe "Über-" und "Unterschwellenspaltung" direkt ablesen. Durch Einfang eines Neutrons in einem Atomkern und Bildung eines Zwischenkerns wird der Energieinhalt des Zwischenkerns im Grundzustand um die Bindungsenergie des Neutrons im Zwischenkern und die kinetische Energie des Neutrons vermehrt. Liegt nun die Bindungsenergie oberhalb des Punktes  $E_{\text{krit}}$ , d.h. oberhalb der Spaltschwelle, dann ist Spaltung bei allen kinetischen Energien des Neutrons möglich und spricht man von "Überschwellenspaltung". Prototypbeispiele sind  $U^{235}$ -oder  $Pu^{239}$ -Kerne, die sich ja schon durch Neutronen sehr kleiner, "thermischer" Energien spalten lassen. Bei Kernen wie  $U^{238}$ , deren Spaltbarkeit (nennenswert) erst bei etwa 1,5 MeV kinetischer Neutronenenergie einsetzt, liegt die Bindungsenergie unterhalb der Spaltschwelle. Nun ist die Spaltschwelle keine scharfe Grenze, unterhalb deren es überhaupt keine Spaltung gibt. Nach den Vorstellungen der Quantentheorie kann Spaltung auch durch sogenanntes "Tunneln" durch die Spaltbarriere unterhalb der Spaltschwelle erfolgen, die Spaltwahrscheinlichkeit nimmt allerdings mit zunehmender Dicke der Spaltbarriere sehr rasch ab. Dadurch erklärt sich ja bekanntlich die Tatsache, daß der Spaltquerschnitt z.B. von  $U^{238}$  nicht als scharfe Stufenfunktion, sondern relativ langsam von 0 ansteigt. Die Möglichkeit von Spaltung auch unterhalb der eigentlichen Spaltschwelle bezeichnet man als "Unterschwellenspaltung". Mit diesem Phänomen befaßt sich (unter anderem) die von Strutinsky entwickelte Theorie.

Sehr vereinfacht besagt sie folgendes: Das Tröpfchenmodell setzt die Dichte der Nukleonen im Kern als homogen voraus, ferner ist die elektrische Ladung der Protonen gleichmäßig über den Kern verteilt gedacht. Aus dem Schalenmodell des Kerns weiß man aber, daß der Kern in Wirklichkeit aus Schalen aufgebaut ist, daß es für die sogenannten magischen Nukleonenzahlen (2, 8, 20, 28, 50, 82, 126) besonders stabile Kerne gibt, daß also die Nukleonendichte im Kern keineswegs homogen ist. Bei der Berechnung des Energieinhalts von Kernen als Funktion der Kerndeformation hat nun Strutinsky

diese durch den Schalenbau der Kerne bedingten Abweichungen von der homogenen Nukleonverteilung des Tröpfchenmodells berücksichtigt und eine modifizierte Form der Spaltbarriere gefunden, die in Abbildung 4 durch die gestrichelte Kurve qualitativ verdeutlicht ist. Der wesentliche Unterschied zur Barriere des Tröpfchenmodells liegt in dem Auftreten einer zweiten Potentialmulde bei der sehr starken Deformation  $\beta_1$ . Bei dem Grundzustand der Mulde handelt es sich um eine Art "formisomeren" Zustand des Zwischenkerns, oberhalb dessen sich ein System von sogenannten "intermediären" Kernniveaus aufbaut. Da der "isomere" Grundzustand bei  $\beta_1$  über dem normalen Grundzustand bei  $\beta_0$  liegt, ist bei gleicher vorgegebener Anregungsenergie die Dichte dieser "intermediären" Niveaus viel geringer als die der energetisch gleich hoch liegenden Zwischenkernresonanzen.

Der Vorgang der Unterschwellenspaltung wird durch dieses zweite Potentialminimum in folgender Weise modifiziert: Quantenmechanisch gesprochen tritt eine Mischung von Zwischenkernresonanz- und "intermediären" Zuständen ein. Sie bewirkt, daß Spaltung nur aus solchen Resonanzen erfolgen kann, die in unmittelbarer Nähe eines solchen "intermediären" Zustands liegen. Resonanzen, die zwischen solchen "intermediären" Zuständen liegen, zeigen keine Spaltung (siehe Abb. 4). Dieses Phänomen hatten wir bereits oben abkürzend mit "intermediärer Unterschwellenspaltung" bezeichnet.

Als Konsequenz daraus sollte für einen Zwischenkern, für den dieses Potentialbild zutrifft, der Spaltquerschnitt im Bereich der Resonanzen etwa in der in Abbildung 5 gezeigten Weise von der Neutronenenergie abhängen. Es sollten deutlich getrennte Gruppen von Spaltresonanzen ( $\Gamma_f > 0$ ) existieren, deren Abstand dem Abstand der "intermediären" Zustände entspricht, dazwischen sollte der Spaltquerschnitt verschwinden oder zumindest sehr klein sein ( $\Gamma_f \approx 0$ ). Dieses Phänomen ist nun tatsächlich in den letzten zwei Jahren in energetisch hoch aufgelösten Resonanzspaltquerschnittmessungen in Saclay, Geel und Harwell an den Kernen von  $U^{234}$  [7],  $Np^{237}$  [8,9],  $Pu^{240}$  [10] und  $Pu^{242}$  [11] einwandfrei nachgewiesen worden.

Entscheidend für unsere weiteren Betrachtungen ist, daß auch bei einem Teil der  $Pu^{239}$ -Resonanzen das Phänomen der "intermediären Unterschwellenspaltung" vorliegt und übereinstimmend wiederum in Saclay [14, 15] und Harwell [16] in jüngster Zeit beobachtet worden ist.

Die Eigenschaften der (s-Wellen)-Resonanzen von  $\text{Pu}^{239}$  sind heute aus hochaufgelösten Messungen von totalen und Partialquerschnitten und einer Reihe zusätzlicher physikalischer Untersuchungen zum Spaltverhalten gut verstanden. Die Resonanzen zerfallen in zwei Gruppen mit den Spins 0 und 1. Die Resonanzen mit dem Spin 0 sind sehr breit infolge sehr großer Spaltbreiten der Größenordnung eV, ihr mittlerer Abstand beträgt etwa 9 eV. Die Spaltschwelle für diese Resonanzen liegt etwa 1,6 MeV unterhalb der Neutronenbindungsenergie [17]; es handelt sich also eindeutig um Überschwellenspaltung. Die Resonanzen mit Spin 1 haben einen mittleren Abstand von etwa 3 eV, kommen also etwa dreimal so häufig vor wie die Spin 0 Resonanzen. Sie haben wesentlich schmalere Spaltbreiten zwischen 0 und etwa 100 meV und bilden scharfe Spitzen auf dem breiten Untergrund der Spin 0 Resonanzen. Die geringe Größe der Spaltbreiten läßt vermuten, daß es sich bei der Spaltung in Spin 1 Resonanzen um Unterschwellenspaltung handelt. Tatsächlich weiß man aus dem sehr steilen Abfall von  $\alpha$  oberhalb von etwa 20 keV [18, 19] (siehe Abb. 2) und aus Kollektivmodellrechnungen [20], daß die Schwelle für Spin 1 Spaltung bei größenordnungsmäßig 100 keV oberhalb der Neutronenbindungsenergie liegt.

Ähnlich wie bei den schon erwähnten Nachbarkernen  $\text{U}^{234}$ ,  $\text{Np}^{237}$ ,  $\text{Pu}^{240}$  und  $\text{Pu}^{242}$  könnte man also auch in der Spin 1 Komponente des Spaltquerschnitts von  $\text{Pu}^{239}$  (im Bereich des Überwiegens von s-Wellen Resonanzen) und damit auch im totalen Spaltquerschnitt von  $\text{Pu}^{239}$  Fluktuationen erwarten. Wie die Abbildung 6 zeigt, sind solche Fluktuationen in  $\sigma_f$  von  $\text{Pu}^{239}$  in den jüngsten besonders gut aufgelösten Messungen von Saclay auch tatsächlich beobachtet [15] und durch ähnliche Messungen in Harwell [16] bestätigt worden. Der Spaltquerschnitt zeigt deutlich Maxima um etwa 500 eV und zwischen 900 eV und 1,4 keV und ein Minimum zwischen 600 und 900 eV. Umgekehrt hat  $\alpha$  gemäß Abbildung 2 Minima um 500 eV und 1 keV und ein deutliches Maximum bei etwa 700 eV.

Den Beweis, daß dieses Verhalten von  $\alpha$  tatsächlich eine Konsequenz des Verhaltens von  $\sigma_f$  ist, läßt sich leicht aus folgender statistischer Betrachtung erbringen. Im statistischen Mittel über viele Nachbarresonanzen ist  $\alpha$  gegeben durch ( $\langle \dots \rangle$  = Mittelwert)

$$\alpha = \frac{\langle \sigma_Y \rangle}{\langle \sigma_f \rangle} = \frac{\langle \sigma_Y^0 \rangle + \langle \sigma_Y^1 \rangle}{\langle \sigma_f^0 \rangle + \langle \sigma_f^1 \rangle}$$

$$\approx \frac{\varepsilon_0 \left( \frac{\bar{\Gamma}_Y}{\bar{\Gamma}} \right)_0 + \varepsilon_1 \left( \frac{\bar{\Gamma}_Y}{\bar{\Gamma}} \right)_1}{\varepsilon_0 \left( \frac{\bar{\Gamma}_f}{\bar{\Gamma}} \right)_0 + \varepsilon_1 \left( \frac{\bar{\Gamma}_f}{\bar{\Gamma}} \right)_1}$$

$$\approx \frac{3 \left( \frac{\bar{\Gamma}_Y}{\bar{\Gamma}_Y + \bar{\Gamma}_f} \right)_1}{1 + 3 \left( \frac{\bar{\Gamma}_f}{\bar{\Gamma}_Y + \bar{\Gamma}_f} \right)_1}$$

wegen  $\Gamma_n^{0,1} \ll \Gamma^{0,1}, \Gamma_f^{0,1}$

und  $\Gamma_n^0, \Gamma_Y^0 \ll \Gamma_f^0$

wobei

$(\bar{\Gamma}_n, \bar{\Gamma}_Y, \bar{\Gamma}_f)_{0,1}$  = mittlere Halbwertsbreiten für Streuung, Einfang bzw. Spaltung für Spin 0 bzw. Spin 1 Resonanzen,  
 $\bar{\Gamma} = \bar{\Gamma}_n + \bar{\Gamma}_Y + \bar{\Gamma}_f$  = mittlere totale Halbwertsbreite,  
 $\varepsilon_{0,1}$  = statistischer Gewichtungsfaktor für Spin 0 (=1/4) bzw. Spin 1 Resonanzen (=3/4).

Für sehr kleine  $\bar{\Gamma}_f$  wird dieser Ausdruck und damit  $\alpha$  sehr groß (z.B.  $\alpha \approx 1,5$  für  $\bar{\Gamma}_f^1 = 10$  meV,  $\bar{\Gamma}_Y^1 = 40$  meV) und für größere  $\bar{\Gamma}_f$  rasch klein (z.B.  $\alpha \approx 0,3$  für  $\bar{\Gamma}_f^1 = 100$  meV). (In diesen Abschätzungen sind die Fluktuationen der Halbwertsbreiten noch vernachlässigt.) Damit ist der Zusammenhang zwischen den Schwankungen von  $\sigma_f$  und  $\alpha$  gezeigt und somit mindestens für den Teilbereich unter 1,5 keV bewiesen, daß sich das fluktuierende Verhalten von  $\alpha$  durch das Phänomen der "intermediären Unterschwellenspaltung" an den Spin 1 Resonanzen von Pu<sup>239</sup> erklären läßt. Die in den obigen Abschätzungen benutzten numerischen Werte für die Spalt- und Einfangbreiten von Spin 1 Resonanzen entsprechen Messungen an indi-

viduellen Resonanzen unterhalb etwa 400 eV /21/. Das Kleinwerden der beobachteten Spin 1 Spaltbreiten macht übrigens zusätzlich noch das Maximum von  $\alpha$  (siehe Abb. 2) bei etwa 300 eV verständlich. Im höheren keV-Bereich werden die Verhältnisse durch schlechtere experimentelle Auflösung und durch das zunehmende Auftreten von p-Wellen-Resonanzen komplizierter und nicht mehr so einfach überschaubar.

Nun zu den  $\alpha$ -Messungen und Abschätzungen selbst. Unter 2 keV sind tatsächlich die vorhandenen Messungen bis auf Unterschiede in der experimentellen Energieauflösung und in den Mittelungsintervallen in recht guter Übereinstimmung. Aus Gründen der Übersichtlichkeit konnten nur die wichtigsten Untersuchungen in die Abbildungen 2 und 3 aufgenommen werden. Oberhalb 2 keV bestehen noch immer schwerwiegende und nur zum Teil aufgeklärte Diskrepanzen in den Bereichen 4-7 keV und 10-30 keV.

Prinzipiell lassen sich im wesentlichen zwei Methoden der Bestimmung von  $\alpha$  unterscheiden: einmal die direkte Messung von  $\alpha$ , zum anderen die indirekte Ableitung von  $\sigma_\gamma$  und damit von  $\alpha$  aus der Differenz der übrigen teils gemessenen, teils theoretisch abgeschätzten Querschnitte (siehe unten).

Die gegenwärtig als zuverlässigst geltende Messung von  $\alpha$  geht auf Gwin et al. [22] von Oak Ridge mit dem Rensselaer Linearbeschleunigern zurück. Zunächst benutzt diese Messung einen schon aus früheren Messungen bekannten bewährten Detektor: zwischen Einfang- und Spalt ereignissen wird durch die unterschiedlichen Pulshöhenspektren eines großen Flüssigszintillatortanks für  $\gamma$ -Strahlung aus Einfang und  $\gamma$ -Strahlung aus Spaltung unterschieden. Weiter spricht für die Gwin-Messungen, daß sie von allen bisherigen Messungen die kleinsten Fehler haben; im Mittel betragen diese etwa  $\pm 15\%$ . Ein weiteres Argument spricht für die Gwin-Messungen. Pitterle et al. [25] von APDA/Detroit und Ribon et al. [26] von Saclay haben unabhängig voneinander im letzten Jahr Abschätzungen von  $\alpha$  aus totalen und den übrigen (außer  $\sigma_\gamma$ )-partiellen Querschnitten gemacht (siehe Abb. 2) gemäß

$$\alpha = \frac{\sigma_\gamma}{\sigma_f} = \frac{\sigma_T - \sigma_f - \sigma_{\text{pot}}^n - \sigma_{\text{res}}^n - \sigma_{\text{in}}}{\sigma_f}$$

Hierbei werden  $\sigma_T$ ,  $\sigma_f$  und der Potentialstreuquerschnitt  $\sigma_{\text{pot}}^n$  aus Experimenten, der Resonanzstreuquerschnitt  $\sigma_{\text{res}}^n$  und der unelastische Streuquerschnitt  $\sigma_{\text{in}}$  aus Abschätzungen mit statistischer Resonanztheorie entnommen. Von diesen Querschnitten sind  $\sigma_T$  und  $\sigma_{\text{pot}}^n$  bis auf wenige % genau bekannt.  $\sigma_f$  ist weit weniger genau bekannt (siehe Abb. 7), die obere und untere Begrenzung der Schätzungen von Ribon entspricht unteren und oberen Werten der benutzten gemessenen Spaltquerschnitte. Am ungenauesten bekannt ist  $\sigma_n^{\text{res}}$ ; seine Größe hängt stark von den benutzten Mittelwerten für Streu-, Einfang- und Spaltbreiten und deren Verteilungen ab.  $\sigma_{\text{in}}$  ist noch nicht genau bekannt, spielt aber nur oberhalb von etwa 10 keV eine Rolle und ist dort höchstwahrscheinlich klein, von der Größenordnung 0,1 - 0,2 b. Die Abschätzungen von Pitterle und Ribon stimmen untereinander, beide Abschätzungen mit den Resultaten von Gwin recht gut überein und stützen so die Ergebnisse der Oak Ridge Messungen.

In Abbildung 2 sind noch zwei weitere direkte  $\alpha$ -Messungen eingetragen, einmal jüngste Wiederholungsmessungen von Schomberg et al. [23]7, die gegenüber den in Karlsruhe berichteten vorläufigen Messungen [2]7 in Pulsformdiskriminierung, Untergrundbestimmung und Elektronik stark verbessert worden sind und z.T. wesentlich niedriger als die früheren Messungen liegen. Unterhalb etwa 4 keV sind sie in guter Übereinstimmung mit den Gwin-Werten, oberhalb 4 keV sind sie zwar schon viel näher als bisher an Gwin herangerückt (bei 10 keV waren sie früher nahe an 1), es bleiben aber noch deutliche Diskrepanzen zwischen Gwin und Schomberg in den Bereichen 4-7 keV und 10-30 keV übrig, die noch nicht geklärt sind.

Die gebrochene Kurve schließlich stellt erste Messungen von Ryabov et al. [24]7 aus Dubna dar, die oberhalb von 2 keV sogar noch unter den KAPL-Messungen liegen. Benutzt wurden als Neutronenquelle der schnelle gepulste Reaktor IBR und als Neutronendetektor ein Flüssigszintillator. Aus Gründen der Übersichtlichkeit ist der Teil der russischen Messungen unterhalb 1,5 keV in Abbildung 2 fortgelassen. In einer intensiven Diskussion zwischen der englischen und der russischen Meßgruppe im Juni vergangenen Jahres in Dubna konnte die große Diskrepanz zwischen der russischen und den anderen Messungen aufgeklärt werden: Im Vergleich zu allen anderen neueren Messungen überschätzten Ryabov et al. die Spaltraten und unterschätzten besonders stark die Einfangraten durch zu hohe Korrekturen für Neutronenstreuung vor Einfang. Erste Korrekturen für beide Effekte im

Anschluß an diese Diskussion brachten eine erhebliche Erhöhung der russischen  $\alpha$ -Werte in die Nähe der Gwin-Werte. Die Russen sind gerade dabei, ihre Messung zu wiederholen.

Oberhalb 30 keV sind die beiden vorhandenen Flüssigszintillatormessungen [27, 28] in guter Übereinstimmung und brauchen daher hier nicht näher diskutiert zu werden.

In Abbildung 3 sind außer den Messungen von Gwin und Schomberg neuere indirekte Schätzungen von Patrick [16], James und Patrick [29] und Michaudon et al. [14, 15, 21] eingetragen, die im wesentlichen die gleiche Methode wie Pitterle und Ribon verwenden. Diese drei Schätzungen sind zwar untereinander noch diskrepant, die Unterschiede sind im wesentlichen durch Unterschiede in den Spaltquerschnitten zu erklären. Alle drei Abschätzungen stützen aber deutlich oberhalb 4 keV die jüngsten Direktmessungen von Schomberg und nicht diejenigen von Gwin. Außerdem sind sie in diesem Bereich deutlich von den Ergebnissen von Pitterle und Ribon verschieden. Diese letzteren Unterschiede lassen sich nur zu einem Teil durch Unterschiede in  $\sigma_f$  erklären. Zu einem Teil rühren sie wohl von Unterschieden in der Abschätzung des mittleren Resonanzstreuquerschnitts her. Oberhalb 10 keV würden die genannten Abschätzungen für  $\alpha$  etwas kleiner werden und damit in größere Nähe zu den Werten von Ribon und Pitterle kommen, wenn der unelastische Streuquerschnitt wie bei Ribon und Pitterle berücksichtigt worden wäre.

Das ursprüngliche  $\alpha(\text{Pu}^{239})$ -Problem hat sich damit auf folgende zwei Diskrepanzen reduziert, die noch zur Erklärung anstehen:

1. Diskrepanzen zwischen den Messungen von Gwin und Schomberg oberhalb 4-7 keV und zwischen 10 und 30 keV,
2. Diskrepanzen in den Querschnittsabschätzungen von  $\alpha$  durch Pitterle und Ribon einerseits und James, Patrick und Michaudon andererseits in denselben Energiebereichen.

Bekanntlich veranstaltet die IAEA im Anschluß an die Tagung der British Nuclear Energy Society über die Physik schneller Reaktoren im Juni dieses Jahres in Winfrith eine zweitägige Diskussionstagung von Experten zum  $\alpha(\text{Pu}^{239})$ -Problem. Es steht zu hoffen, daß diese letzten noch ausstehenden Fragen dort geklärt werden.

## 2. $6_f$ -Pu<sup>239</sup>

In Abbildung 7 sind ein Großteil der abgeschlossenen und zuverlässigeren Messungen des Spaltquerschnitts von Pu<sup>239</sup> im Bereich 1 keV bis 1 MeV aufgetragen. Oberhalb 10 keV fehlen sehr viele der älteren Messungen, die durch die gezeigten neueren Messungen z.T. überholt worden sind. Eine ausführliche Dokumentation dieser älteren Messungen findet sich z.B. in den Referenzen [30, 31]. Unterhalb 20 keV sind Mittelwerte der Messungen über 1 keV breite Intervalle und über das Intervall 10-20 keV eingetragen. Außer den Meßwerten sind auch die Mittelwertrechnungen von Pitterle [25], Ribon [26] und James, Patrick [29] eingetragen. Die Auswertung von James und Patrick ist im Augenblick dadurch besonders repräsentativ, daß eine sorgfältige Vorauswahl unter den Messungen getroffen und nahezu alle gegenwärtig verfügbaren Messungen benutzt wurden. Sicherlich zeigen die Messungen immer noch eine recht große Streubreite von etwa  $\pm 10-15\%$ . Läßt man die frühen, allerdings im Bereich der aufgelösten Resonanzen später immer wieder bestätigten Messungen von Bollinger [32] fort, dann ergeben sich allerdings erheblich kleinere Ungenauigkeiten von nur noch  $\pm 3-10\%$ ; d.h. die neueren Messungen liegen näher beieinander.

Nun zu den Messungen oberhalb 20 keV bis 1 MeV. Bekanntlich gelten die Spaltquerschnittsmessungen von White et al. [36, 37] in diesem Bereich als besonders zuverlässig. Vor den noch früheren Messungen zeichnen sich diese Messungen durch folgende Verbesserungen aus:

1. Die Messungen wurden in Back-to-back Ionisationskammern relativ zum Spaltquerschnitt von U<sup>235</sup> gemacht und der Spaltquerschnitt von U<sup>235</sup> bei denselben Energien absolut gemessen. Entgegen früheren Messungen wurden von White in Absolut- und Relativmessungen die gleichen Spaltkammern verwandt.
2. Die Dicke der Spaltmaterialfolien war so gering, daß eine klare Trennung der Impulse von Spaltfragmenten und von  $\alpha$ -Teilchen aus dem natürlichen radioaktiven  $\alpha$ -Zerfall von Pu<sup>239</sup> gelang.
3. Bei den Absolutmessungen an U<sup>235</sup> wurde besonderer Wert auf die sorgfältige Bestimmung des Neutronenflusses ( $H_2$ -Proportionalzähler und andere, gegeneinander getestete Zähler) und der Untergrund- und Streukorrekturen gelegt.
4. Die Genauigkeitsangaben der Messungen,  $\pm 2,5-3,5\%$ , erscheinen auf Grund von 1-3 zuverlässiger als ähnlich gut angegebene Genauigkeiten vorhergehender Messungen.



Bekanntlich liegen die White'schen Spaltquerschnittswerte für  $\text{Pu}^{239}$  recht erheblich, bis zu 20%, unter denen vorhergehender Messungen. Die Querschnittsverhältnisse  $\sigma_f(\text{Pu}^{239})/\sigma_f(\text{U}^{235})$  aus verschiedenen Messungen stimmen jedoch sehr viel besser überein. Das gilt besonders für die White'schen Resultate im Vergleich zu den davor als best geltenden Relativmessungen von Allen, Ferguson aus Harwell [39] im Bereich 100 keV - 3 MeV (siehe [31]).

Die White'schen Messungen erstrecken sich in dem großen Bereich zwischen 20 keV und 1 MeV leider nur auf einige wenige Punkte. Gilboy und Knoll [38] unternahmen daher systematische Messungen des Spaltquerschnittsverhältnisses  $\sigma_f^{49}/\sigma_f^{25}$  im Bereich 5-150 keV mit dem Karlsruher Van de Graaff-Beschleuniger. Leider zeigen diese Messungen eine sehr schlechte Diskriminierung von  $\alpha$ - und Spaltfragmentimpulsen, was z.T. an der wesentlich größeren Probendicke als bei White liegt. Zum anderen wurden zwei verschiedene Methoden zur Bestimmung der Ansprechwahrscheinlichkeit der Spaltkammern benutzt, die zu systematisch nahezu über den ganzen Meßbereich verschiedenen Spaltquerschnittsergebnissen führten (bis zu 15%).

Wegen dieser systematischen Differenzen wurden in Karlsruhe von Pflerschinger und Käppeler neue Messungen des Spaltquerschnittsverhältnisses  $\sigma_f^{49}/\sigma_f^{25}$  in Angriff genommen und auf den Energiebereich 5 keV - 1 MeV ausgedehnt. Diese Messungen zeichnen sich durch besondere Sorgfalt aus. Die beiden Spaltfragmente werden in Spaltkammern in Koinzidenz gemessen. Durch außerordentlich dünne, im Elektrosprühverfahren im Zentralbüro für Kernmessungen in Geel hergestellte Proben, homogen in Dicke und Zusammensetzung, gelingt ein Nachweis nahezu aller Spaltungen (92-95%), durch die kleinen Spaltraten/Zeiteinheit eine quantitative Unterdrückung falscher Koinzidenzen und schließlich wieder wie bei White die deutliche Trennung von  $\alpha$ - und Spaltfragmentimpulsen. Es wurden zahlreiche Meßpunkte zwischen 5 keV und 1 MeV aufgenommen. Vorläufige Ergebnisse liegen in der Nähe der White'schen Daten; für die endgültigen Ergebnisse muß noch die chemische Bestimmung der Gesamtmenge Spaltmaterial in den Folien abgewartet werden. Die Genauigkeit der bisherigen Bestimmung besonders der  $\text{U}^{235}$ -Teilchenzahl über Massenspektroskopie und  $\alpha$ -Zählraten reicht wegen der starken  $\alpha$ -Aktivität des beigemenkten  $\text{U}^{234}$  und der noch bestehenden Ungenauigkeiten in der Halbwertszeit für den  $\alpha$ -Zerfall von  $\text{U}^{234}$  noch nicht aus. Die Genauigkeit der Endergebnisse wird zu 2-3% erwartet.

### 3. $\sigma_f$ -U<sup>235</sup>

Über das Problem der genauen Kenntnis des Spaltquerschnittverhältnisses  $\text{Pu}^{239}/\text{U}^{235}$  hinaus besteht noch das Problem der Bestimmung absoluter Spaltquerschnitte für  $\text{Pu}^{239}$ , wozu man die absoluten Spaltquerschnitte von  $\text{U}^{235}$  wissen muß. Dieses Problem ist viel härter, weil es die, und zwar sehr genaue, Messung des Neutronenflusses erfordert. Die Messungen von White [37] an  $\text{U}^{235}$ , die bis vor etwa zwei Jahren als "Bestwerte" galten, wurden oben schon erwähnt. Systematisch von diesen Messungen abweichend sind die Messungen jüngeren Datums von Pönitz [41] im Bereich 30 keV bis 1,5 MeV. Zur Neutronenflußmessung wird ein sogenannter "grauer" Neutronendetektor, d.h. Abbremsung und anschließender Einfang der Neutronen in einem moderierenden Medium und Messung der aus dem Moderator austretenden  $\gamma$ -Strahlung verwandt. Die Ansprechwahrscheinlichkeit dieses Detektors wurde als konstant hinsichtlich der Neutronenenergie errechnet. Die gemessene Spaltquerschnittsform wurde auf eine absolute  $\sigma_f(\text{U}^{235})$ -Messung von Knoll und Pönitz [42] bei 30 keV normiert. Die Diskrepanzen zwischen Pönitz und White erstrecken sich über den ganzen Energiebereich 30 keV - 1,5 MeV und betragen maximal etwa 12% bei 1 MeV. Neuere Untersuchungen zur Klärung dieser Diskrepanzen führten bisher nur zu einer leichten Annäherung der beiden Meßwertreihen.

### 4. $\sigma_\gamma$ -U<sup>238</sup>

Die Abbildung 8 zeigt die neueren, wichtigen Messungen von  $\sigma_\gamma$  für  $\text{U}^{238}$  im Bereich 1 keV bis 10 MeV. Ferner ist aufgetragen eine ~~glatt~~ durchgezogene Kurve, die bis vor relativ kurzer Zeit den "besten" Stand darstellte [43] und sich folgendermaßen begründete. Unterhalb einiger 10 keV ist die Kurve aus Beiträgen von Neutronen mit Bahndrehimpulsen  $l=0$  und  $l=1$  bestimmt. Aus sehr umfangreichen Resonanzmessungen und der theoretischen Interpretation mittlerer totaler Querschnittsmessungen im keV-Bereich ließen sich mittlere Resonanzparameter und deren statistische Verteilungen und damit der Einfangquerschnitt von  $\text{U}^{238}$  mit einiger Genauigkeit bis zu etwa 50 keV voraussagen. Oberhalb 100 keV bis weit in den MeV-Bereich standen recht genaue Messungen von Barry et al. [44] aus Harwell zur Verfügung, die sich vor den anderen, nicht aufgetragenen früheren Messungen in diesem Bereich besonders durch Normierung auf die sehr genau bekannten Neutronenstreuquerschnitte des Wasserstoffs auszeichneten. Zwischen 50 und 100 keV war eine glatte Interpolation möglich.

Die in Abbildung 8 aufgetragenen Messungen zeigen systematische Abweichungen untereinander, die noch nicht geklärt sind. Offensichtlich reicht die absolute Normierung der Messungen nicht aus, um die Unterschiede zu erklären. Die Meßwerte von Macklin et al. [45] z.B. sind auf  $\sigma_Y$ -Werte von Ta normiert [51], die noch unter denen liegen, die man auf Grund neuerer Messungen und Meßauswertungen für richtig hält [52]. Normierung auf diese neuen  $\sigma_Y$ (Ta)-Werte würde also die  $\sigma_Y(U^{238})$ -Ergebnisse von Macklin noch vergrößern.

Im PETREL-Bombenexperiment [50] wurde  $\sigma_Y$  von  $U^{238}$  im Bereich aufgelöster Resonanzen zwischen 20 eV und 2 keV gemessen. Der außerordentlich geringe störende Untergrund, die hohe Neutronenintensität und die sehr gute Energieauflösung gestatten außer einer Einfangbreitenanalyse der breiten s-Wellen-Resonanzen die Entdeckung und Streubreitenanalyse sehr vieler p-Wellen-Resonanzen. Die wesentlichen Ergebnisse dieser Analyse sind eine um nahezu 30% kleinere mittlere Einfangbreite und um 60% kleinere mittlere p-Wellen-Neutronenstreubreiten gegenüber den früheren Werten, in Zahlen

|                        | KFK 120/I<br>[53] | PETREL<br>[50] |
|------------------------|-------------------|----------------|
| $\bar{\Gamma}_Y$ (meV) | 24,8              | 19,1           |
| $S_1 \cdot 10^4$       | 2,5               | 1,5            |

Diese niedrigen mittleren Resonanzparameter führen zu gegenüber der früheren "Best"kurve wesentlich niedrigeren  $\sigma_Y$ -Werten wie aus der gestrichelten Kurve in Abbildung 8 zu ersehen ist.

Eine Reihe von Argumenten spricht gegen die Zuverlässigkeit der PETREL-Messungen. Zunächst führen die niedrigen Einfangbreiten zu einer Unterschätzung des experimentell wohlfundierten Werts für das unendlich verdünnte Resonanzintegral für Einfang ( $RI_Y^\infty$ ) von  $U^{238}$ ,  $280 \pm 10$  b, um etwa 15 b. Ferner ergeben alle anderen bisherigen experimentellen Bestimmungen von Einfangbreiten von  $U^{238}$ -Resonanzen Mittelwerte zwischen 23 und 25 meV, die wesentlich besser mit dem obigen Wert von  $RI_Y^\infty$  verträglich sind. Weiterhin ist die Tatsache, daß der mit den mittleren PETREL-Resonanzparametern errechnete Verlauf des Einfangquerschnitts oberhalb einiger keV unterhalb aller anderen Experimente liegt, im wesentlichen durch die sehr kleine mittlere Einfangbreite bedingt. Schließlich sind durch Ungenauigkeiten der Flußnormierung

und Mängel der Elektronik die Meßgenauigkeiten der Querschnitte sehr groß, nämlich etwa  $\pm 20\%$ .

Die Messungen von Moxon und Rae [46, 47] liegen im wesentlichen zwischen der früheren "Best"- und der PETREL-Kurve. Sie sind normiert auf den  $(n,\alpha)$ -Wirkungsquerschnitt von  $B^{10}$ , von dem man inzwischen aus zahlreichen Messungen weiß, daß er unterhalb 100 keV, also im ganzen Meßbereich von Moxon, in sehr guter Näherung wie  $1/v$  verläuft. In jüngster Zeit sind die Messungen von Moxon und Rae mit nahezu gleichem Ergebnis nochmal wiederholt worden [54]; dabei wurde insbesondere die  $1/v$ -Abhängigkeit der  $(n,\alpha)$ -Normierung noch einmal geprüft. Die in Abbildung 8 aufgetragenen Moxon-Daten entsprechen einer mittleren Einfangbreite von etwa 23 meV, die deutlich über dem PETREL-Wert liegt. Allerdings bestätigt sich in etwa der niedrige Wert für die p-Wellenstrebreiten. Damit bleibt noch eine Diskrepanz zwischen den höheren aus der Analyse mittlerer totaler Querschnittsmessungen und den niedrigeren aus den Einfangmessungen folgenden p-Wellenstrebreiten zu klären. Im Bereich 20-100 keV liegen die Moxon-Werte noch deutlich, um etwa 10%, unter den Werten von Pönitz et al. [48] und Menlove, Pönitz [49].

Die Messungen von Pönitz [48] benutzten zur Neutronenflußmessung den schon erwähnten "grauen" Detektor. Sie sind normiert auf eine Absolutwertbestimmung von  $\sigma_{\gamma}(U^{238})$  bei 30 keV durch Menlove und Pönitz [49]. Während sie unter 100 keV bis auf wenige % mit der früheren "Best"-Kurve übereinstimmen, ergeben sich oberhalb 100 keV Abweichungen von im Mittel etwa 10% zu dieser Kurve und damit zu den Meßwerten von Barry et al. [44]. Dieser Unterschied zwischen Pönitz und Barry entspricht dem Unterschied zwischen Pönitz und White im Spaltquerschnitt von  $U^{235}$ , denn Barry benutzte zur Neutronenflußmessung den Detektor von White. Damit ist der Unterschied in den  $\sigma_{\gamma}$  Messungen von Pönitz und Barry wie bei  $\sigma_{\gamma}(U^{235})$  auf eine noch nicht geklärte Diskrepanz im Neutronennachweis mit dem "grauen" Detektor von Pönitz einerseits und dem von White verwandten Proportionalzähler andererseits zurückgespielt. Die Moxon-Daten unterstützen eher die Pönitz- als die Barry-Daten.

Es scheint die Schlußfolgerung berechtigt, daß im keV-Bereich der Einfangquerschnitt von  $U^{238}$  erheblich niedriger liegt als bisher angenommen wurde. Diese Konklusion wird durch Vergleich von reaktorphysikalischen Rechnungen mit den Ergebnissen von Integralexperimenten gestützt [6].

### 5. $\sigma_f$ , $\sigma_f$ -Pu<sup>240</sup>

Abbildung 9 zeigt einen Vergleich des ABN-Satzes [55] mit dem heutigen Kenntnisstand für Spalt- und Einfangquerschnitte von Pu<sup>240</sup> im Bereich 1 keV - 10 MeV. Die Kurven entsprechen im wesentlichen neueren Auswertungen der vorhandenen Messungen durch Yiftah et al. [56].

Die Unterschiede sind erheblich. Die Einfangquerschnitte von Yiftah, Schmidt et al. [56] liegen etwa um einen Faktor 2 niedriger als die ABN-Querschnitte. Das ist einfach zu erklären: Die Resonanzkenntnis, die den Russen für Pu<sup>240</sup> zur Verfügung stand, war noch außerordentlich geringfügig; insbesondere lieferte sie viel zu hohe Einfang- und Streubreiten und damit einen zu hohen Einfangquerschnitt. Die heutigen Zahlen basieren auf den sehr umfangreichen neueren Resonanzmessungen der Linearbeschleunigergruppe Geel für totale und sämtliche Partialquerschnitte von Pu<sup>240</sup> im eV- und niedrigen keV-Bereich [57].

Der charakteristische Unterschied im Spaltquerschnitt unterhalb 200 keV beruht auf der Tatsache, daß man die Unterschwellenspaltung von Pu<sup>240</sup> inzwischen wesentlich genauer untersucht hat [57, 58]. Der Querschnittsverlauf, der in Abbildung 9 leider nur im Mittel über viele Resonanzen eingezeichnet werden konnte, zeigt bei kleinen Energien den Charakter diskreter Resonanzgruppen, wie er oben am Beispiel der Pu<sup>239</sup> Spaltresonanzen diskutiert wurde, der sich ebenso aus dem 'intermediären' Charakter der Unterschwellenspaltung erklärt [59].

In diesem Zusammenhang ist über die Ergebnisse einiger Integraleexperimente von Oosterkamp [60] an der Karlsruher SNEAK-Anordnung zu berichten, die eine Überprüfung der Pu<sup>240</sup>-Querschnitte zum Ziel hatten. Oosterkamp führte Substitutionsexperimente an zwei verschiedenen SNEAK-Anordnungen für zwei Brennstoffe unterschiedlichen Pu<sup>240</sup>-Gehalts durch und verglich die gemessenen Reaktivitätsunterschiede mit theoretischen Rechnungen. Für die Messungen standen zwei Pu<sub>2</sub>/UO<sub>2</sub>-Gemische zur Verfügung; in dem einen Gemisch enthielt das Pu 8%, in dem anderen 22% Pu<sup>240</sup>. Die Experimente wurden in zwei SNEAK-Anordnungen mit unterschiedlichen Spektren durchgeführt. Die eine Anordnung, SNEAK-3B-2 simuliert einen dampfgekühlten schnellen Reaktor und hat ein relativ weiches Spektrum, die andere Anordnung, SNEAK-4B, stellt ein Mock-up des schnellen Cores des KNK-Reaktors mit einem relativ harten Neutronenspektrum dar. Die Gemische wurden jeweils in der zentralen

Reaktorzone eingesetzt und substituiert. In den Rechnungen wurden einmal die Querschnitte des ABN-Satzes benutzt und zum anderen Einfangquerschnitte von Pitterle/APDA [61] 7, die noch etwas unter denjenigen von Yiftah et al. liegen. Die Ergebnisse sind wie folgt:

|            | $\Delta\rho \cdot 10^3$          |                               |
|------------|----------------------------------|-------------------------------|
|            | SNEAK-3B-2<br>(weiches Spektrum) | SNEAK-4B<br>(hartes Spektrum) |
| Experiment | 16,6                             | 22,9                          |
| ABN        | 11,3 0,5                         | 13,3 0,5                      |
| Pitterle   | 20,0 0,5                         | 21,8 0,5                      |

Die Pitterle-Daten ergeben offensichtlich eine deutliche Verbesserung der Übereinstimmung der Rechenergebnisse mit dem Experiment, vor allem für das harte Spektrum. Die Yiftah-Daten liegen besonders im unteren keV-Bereich höher als die von Pitterle, damit würde sich die Übereinstimmung für das weiche Spektrum noch etwas verbessern, die für das harte Spektrum allerdings etwas verschlechtern.

#### 6. $\bar{\nu}$ spontan - Cf<sup>252</sup>; $\bar{\nu}$ - Pu<sup>239</sup>

Zum Abschluß sei kurz auf den gegenwärtigen Stand der Kenntnis für die mittlere Zahl der spontanen Spaltneutronen von Cf<sup>252</sup> und neuere  $\bar{\nu}$ -Messungen im Resonanzbereich für Pu<sup>239</sup> eingegangen.

Die mittlere Zahl von bei der spontanen Spaltung von Cf<sup>252</sup> freigesetzten Neutronen ist der wichtigste Standard für thermische und energieabhängige Messungen von  $\bar{\nu}$  an Spalt- und Brutmaterialien. Die Abbildung 10 zeigt die wichtigsten Messungen der letzten Jahre. Leider kann hier nicht im einzelnen auf die verschiedenen Meßmethoden eingegangen werden. Für den Neutronennachweis wurden außer dem Borpile Flüssigszintillatoren bzw. die Mn-Aktivierung in Mn-Sulfatbädern verwandt. Die Fehler der Einzelmessungen liegen z.T. weit unter  $\pm 1\%$ , trotzdem ist die Spannweite der Messungen auf Grund noch weitgehend unbekannter systematischer Fehler immer noch von der Größenordnung  $\pm 1\%$ . Wenn man also nur die  $\bar{\nu}$ -Messungen herausgreift, die auf  $\bar{\nu}_{\text{spontan}}(\text{Cf}^{252})$  normiert sind, und das ist ein hoher Prozentsatz, so sind deren Ungenauigkeiten auf Grund allein der Ungenauigkeiten des Cf<sup>252</sup>-Standards immer noch etwa  $\pm 1\%$ .

Die Messungen sind als Messungen eines Standards durchweg sehr sorgfältig durchgeführt und von allen Meßgruppen gründlich untereinander verglichen und diskutiert worden (siehe z.B. [69\_7]), allerdings noch ohne entscheidenden Erfolg. Immerhin fällt auf, daß abgesehen von Abweichungen, die durch Normierung auf unterschiedliche Neutronenquellen bekannter Stärke hervorgerufen werden, im Mittel die Flüssigszintillatormessungen höher liegen als die Mn-Bad-Messungen. Mögliche Gründe für diesen Unterschied sind bei den Mn-Bad-Messungen eine Unterschätzung der Mn-Aktivierung infolge chemischer Ausfällung von Mn aus der Sulfatlösung, was zu niedrigen  $\bar{\nu}$ -Werten führt, bei den Szintillatormessungen fehlende Korrekturen für verzögerte  $\gamma$ -Impulse, was zu hohen  $\bar{\nu}$ -Werten führt. Beide Effekte würden zu besserer Angleichung der verschiedenen Meßwerte führen, die Meinungen darüber sind aber noch geteilt. Intensive Bemühungen zur Klärung der Diskrepanzen sind im Gange.

Als letztes sei noch kurz über einige Messungen von  $\bar{\nu}$  in aufgelösten Resonanzen von  $\text{Pu}^{239}$  berichtet, die vor einigen Monaten am Linearbeschleuniger des Rensselaer Polytechnic Institute in den USA durchgeführt worden sind [70\_7]. In diesen Messungen wurde festgestellt, daß im Mittel die Zahl der Spaltneutronen in Spin 0 Resonanzen um 2,6% über derjenigen in Spin 1 Resonanzen liegt.

Physikalisch wäre diese Beobachtung erklärbar aus dem schon früher erwähnten Energieunterschied der Spaltschwellen von nahezu 2 MeV für die beiden Spins. Die Anregungsenergie der Spaltfragmente und damit die Neutronenzahl sollte demnach für Spin 0 Resonanzen entsprechend höher liegen als für Spin 1 Resonanzen. Leider liegt eine absolute Normierung der Ergebnisse noch nicht vor. Man weiß daher also noch nicht, wie sich ein Mittelwert von  $\bar{\nu}$  über viele Resonanzen

$$\bar{\nu}_{\text{Res}} = \frac{\int_E (\bar{\nu}_0 \sigma_{f0} + \bar{\nu}_1 \sigma_{f1})(E) dE}{\int_E (\sigma_{f0} + \sigma_{f1})(E) dE}$$

zu dem entsprechenden bekannten thermischen Wert verhält:

$$\bar{\nu}_{\text{therm}} = \left( \frac{\bar{\nu}_0 \sigma_{f0} + \bar{\nu}_1 \sigma_{f1}}{\sigma_{f0} + \sigma_{f1}} \right) (0,025 \text{ eV})$$

Diese Frage wird gegenwärtig intensiv untersucht.

### Konklusion

Dieser Bericht sollte verdeutlichen, daß es zwar leider immer noch Diskrepanzen in den wichtigsten mikroskopischen Dateninformationen für Spalt- und Brutkerne gibt, daß aber in Querschnittskenntnis und im physikalischen Verständnis des Wirkungsquerschnittsverhaltens, insbesondere bei der Spaltung von  $\text{Pu}^{239}$ , in der letzten Zeit erhebliche Fortschritte erzielt worden sind. Das Stadium der Erstmessungen ist in fast allen Fällen überschritten und ist in ein Stadium von sorgfältigen "Entscheidungs"-Messungen zur Aufhellung von Diskrepanzen und zu weitaus detaillierteren Vergleichen verschiedener Messungen als bisher üblich übergegangen. Eine Reihe solcher "Entscheidungs"-Messungen ist noch unterwegs, es sei in diesem Zusammenhang noch einmal auf die Messungen von Pflöschinger und Käppeler in Karlsruhe und das umfangreiche Meßprogramm von Pönitz in Argonne für die Spaltquerschnitte hingewiesen. Zudem nimmt die systematische Testung mikroskopischer, in Reaktorrechnungen verwandter Daten an den Ergebnisse integraler Experimente immer mehr an Bedeutung und Aussagekraft zu. Schließlich kann man auf Grund der bisher erreichten Resultate, der intensiven internationalen Bemühungen in Messung und Auswertung von Kerndaten und des zunehmenden Vergleichs mit Reaktorexperimenten die vorsichtige Prognose wagen, daß für die wichtigsten Spalt- und Brutmaterialien gegen Ende 1969 eine Reihe der besprochenen Diskrepanzen aufgeklärt und bis etwa Ende 1970 wenigstens für diese für die Berechnung und Vorhersage der Eigenschaften schneller Leistungsreaktoren wichtigsten Materialien eine zuverlässige Datenbasis geschaffen sein wird.



Literatur

1. J.J. Schmidt, KFK 791, 1968
2. M.G. Schomberg et al., IAEA Conf. on Fast Reactor Physics Karlsruhe, 1967, Paper SM - 101/41, Proceed. Vol. I, S. 289
3. W.R. Kanne et al., Geneva Conf. 1955, P/595; Proceed. Vol. 4, S. 315
4. J.B. Sampson, D.F. Molino, KAPL-1793, 1957
5. J.B. Sampson, E.A. Luebke, Nucl. Sci. Eng. 4, 745, 1958
6. H. Küsters, J.J. Schmidt et al., KFK 793 (EUR 3962e, EANDC(E)-113 "U") 1968
7. G.D. James, E.R. Rae, Nucl. Phys. A118, 313, 1968
8. D. Paya et al., IAEA Conf. on Nuclear Data for Reactors, Paris, 1966, Proceed. Vol. 2, S. 128
9. A. Michaudon, Second Conf. on Neutron Cross Sections and Technology, Washington, 1968, Proceed. Vol. I, S. 427
10. E. Migneco, J.P. Theobald, Second Conf. on Neutron Cross Sections and Technology, Washington, 1968, Proceed. Vol. I, S. 527; H. Weigmann, unveröffentlicht, 1968
11. E.R. Rae, private Mitteilung, 1968
12. V.M. Strutinsky, Nucl. Phys. A95, 420, 1967
13. N. Bohr, J.A. Wheeler, Phys. Rev. 56, 426, 1939
14. J. Blons et al., EANDC(E)-89 "U", 1968, S. 179
15. J. Blons et al., C.R. Acad. Sci. Paris, Vol. 267, S. 901, Serie B, 1968

16. B.H. Patrick et al., EANDC(UK)-96 "AL", 1968
17. J.A. Northrop et al., Phys. Rev. 115, 1277, 1959
18. J.J. Schmidt, ANS National Topical Meeting on Reactor Physics in the Resonance and Thermal Regions, San Diego, 1966, Proceed. Vol. II, S. 223
19. A. Michaudon, Colloque de Physique Nucléaire "Noyaux moyens et lourds", Bordeaux, März 1967
20. J.J. Griffin, IAEA Conf. on the Physics and Chemistry of Fission, Salzburg, 1965, Proceed. Vol. I, S. 23
21. H. Derrien et al., IAEA Conf. on Nuclear Data for Reactors, Paris, 1966, Proceed. Vol. II, S. 195; A. Michaudon, ibidem Vol. II, S. 161
22. R. Gwin et al., WASH-1093 (EANDC(US)-105 "U", INDC(US)-2 "U"), 1968, S. 106; G. de Saussure, private Mitteilung, 1968
23. M.G. Schomberg et al., unveröffentlicht, 1968; E.R. Rae, private Mitteilung, 1969
24. Y.V. Ryabov et al., At. Energ. 24, 351, 1968
25. T.A. Pitterle et al., Second Conf. on Neutron Cross Sections and Technology, Washington, 1968, Proceed. Vol. II, S. 1243
26. P. Ribon et al., CEA-N-989 (EANDC(EUR)-111), 1968
27. J.C. Hopkins, B.C. Diven, Nucl. Sci. Eng. 12, 169, 1962
28. G. de Saussure et al., IAEA Conf. on Nuclear Data for Reactors, Paris, 1966, Proceed. Vol. II, S. 233
29. G.D. James, B.H. Patrick, AERE-M2065, 1968

30. J.J. Schmidt, KFK 120/Teil I, 1966, Abschnitt VI 3
31. W.G. Davey, Nucl. Sci. Eng. 26, 149, 1966; ibidem 32, 35, 1968
32. L.M. Bollinger et al., Geneva Conf. 1958, P/687; Proceed. Vol. 15, S. 127
33. E.R. Shunk et al., First Conf. on Neutron Cross Section Technology, Washington, 1966, Proceed. S. 979
34. A. Hemmendinger, IAEA Conf. on Nuclear Data for Reactors, Paris, 1966, Proceed. Vol. II, S. 219
35. G.D. James, ANL-7320, 1966, S. 16; AERE-PR/NP-9, 1966
36. J.L. Perkin et al., Reactor Sci. Techn. 19, 423, 1965
37. P.H. White, Reactor Sci. Techn. 19, 325, 1965
38. W.B. Gilboy, G.F. Knoll, IAEA Conf. on Nuclear Data for Reactors, Paris, 1966, Proceed. Vol. I, S. 295; siehe auch KFK-450, 1966; W.B. Gilboy, private Mitteilung, 1967
39. W.D. Allen, A.T.G. Ferguson, Proc. Phys. Soc. A70, 573, 1957
40. E. Pflöschinger, F. Käppeler, Euratom Progress Report 1968; private Mitteilungen 1968/69

41. W.P. Pönitz, Second Conf. on Neutron Cross Sections and Technology, Washington, 1968, Proceed. Vol. I, S. 503
42. G. Knoll, W.P. Pönitz, J. Nucl. En. 21, 643, 1967
43. Referenz 30, Abschnitt VI 2
44. J.F. Barry et al., J. Nucl. En., Parts A/B, Reactor Sci. Techn. 18, 491, 1964
45. R.L. Macklin et al., WASH-1046, 1964, S. 88, 90; siehe auch ORNL-TM-761, 1964
46. M.C. Moxon, berichtet durch A.T.G. Ferguson, N.J. Pattenden in ANL-6792, 1963, S. 11
47. M.C. Moxon, E.R. Rae, berichtet durch E.R. Rae et al. in Geneva Conf. 1964, P/167
48. K.H. Beckurts et al., IAEA Conf. on Fast Reactor Physics, Proceed. Vol. I, S. 67; siehe auch W.P. Pönitz et al., KFK-635 (EUR-3679e), 1967
49. H.O. Menlove, W.P. Pönitz, Nucl. Sci. Eng. 33, 24, 1968
50. N.W. Glass et al., Second Conf. on Neutron Cross Sections and Technology, Washington, 1968, Proceed. Vol. I, S. 573

51. J.H. Gibbons et al., Phys. Rev. 122, 182, 1961
52. W. Hart, AHSB(S) R141, 1968
53. Referenz 30, Abschnitt IV 2
54. M.C. Moxon, E. Rae, private Mitteilung, 1969
55. L.P. Abagian et al., KFK-tr-144, 1964
56. S. Yiftah et al., IAEA Conf. on Fast Reactor Physics, Karlsruhe, 1967, Proceed. Vol. I, S. 123; J.J. Schmidt, unveröffentlicht, 1969
57. M.G. Cao et al., Second Conf. on Neutron Cross Sections and Technology, Washington, 1968, Proceed. Vol. I, S. 513; W. Kolar, K.H. Böckhoff, ibidem Vol. I, S. 519; E. Migneco, J.P. Theobald, ibidem Vol. I, S. 527; H. Weigmann et al., ibidem, Vol. I. S. 533
58. D.H. Byers et al., Conf. - 660 303 (Washington), Vol. II, S. 903
59. H. Weigmann, unveröffentlicht, 1968
60. W. Oosterkamp, private Mitteilung, 1969
61. T.A. Pitterle et al., Second Conf. on Neutron Cross Sections and Technology, Washington, 1968, Proceed. Vol. II, S. 1253

62. I. Asplund-Nilsson et al., Nucl. Sci. Eng. 16, 124, 1963
63. J.C. Hopkins, B.C. Diven, Nucl. Phys. 48, 433, 1963
64. P.H. White, E.J. Axton, J. Nucl. En. 22, 73, 1968
65. E.J. Axton, private Mitteilung, 1969
66. A. Moat et al., J. Nucl. En., Pts. A/B, Reactor Sci. Techn. 15, 102, 1961
67. D.W. Colvin, M.G. Sowerby, IAEA Conf. on the Physics and Chemistry of Fission, Salzburg, 1965, Vol. 2, S. 25
68. A. de Volpi, K.G. Porges, IAEA Conf. on Nuclear Data for Reactors, Paris, 1966, Proceed. Vol. I, S. 297
69. Report of the IAEA Panel on Nuclear Standards for Neutron Measurements, Brüssel, IAEA-107, 1968
70. S. Weinstein, R.C. Block, private Mitteilung, 1969

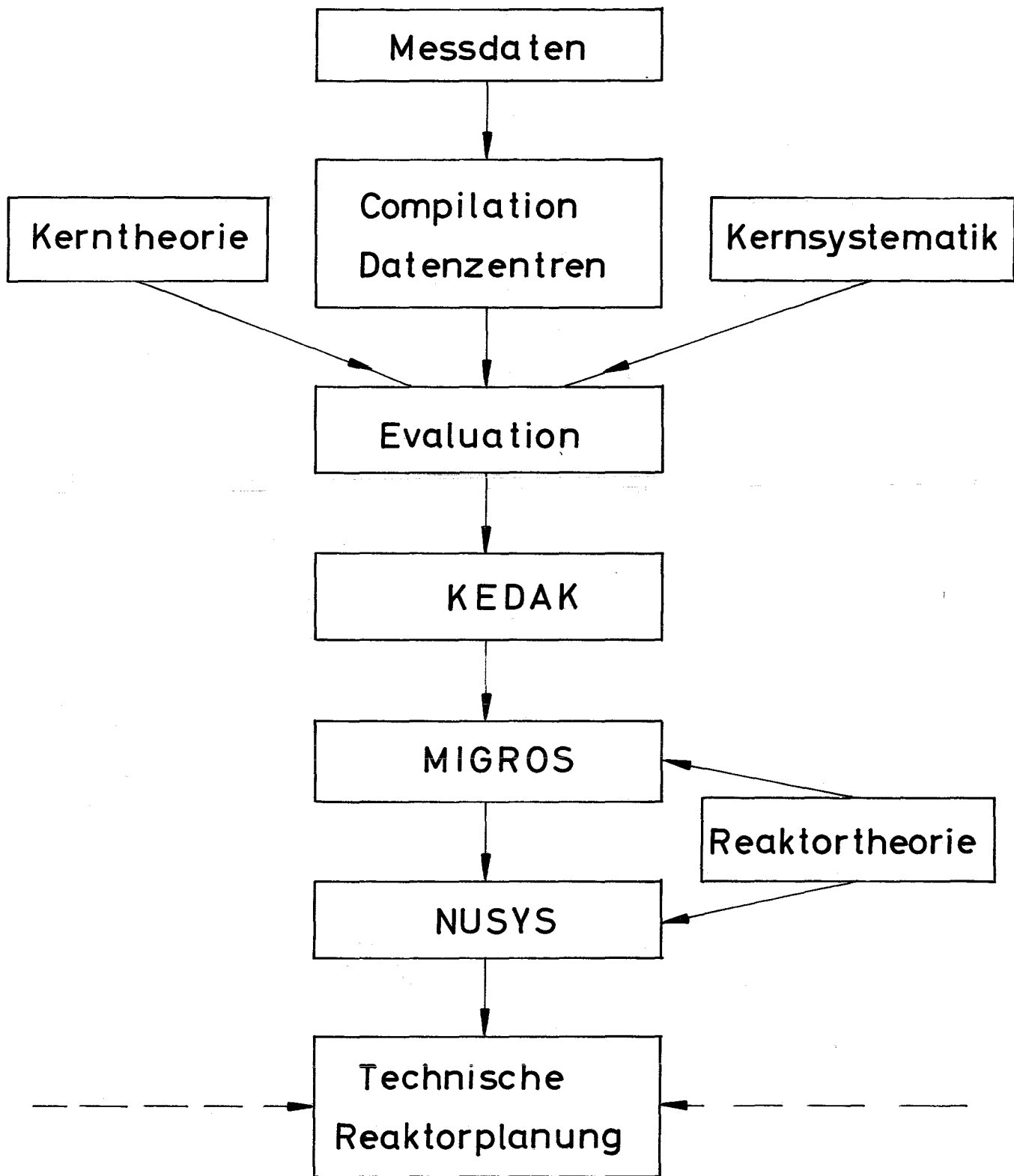


Abbildung 1

Abbildung 2

$\alpha$  - Pu 239

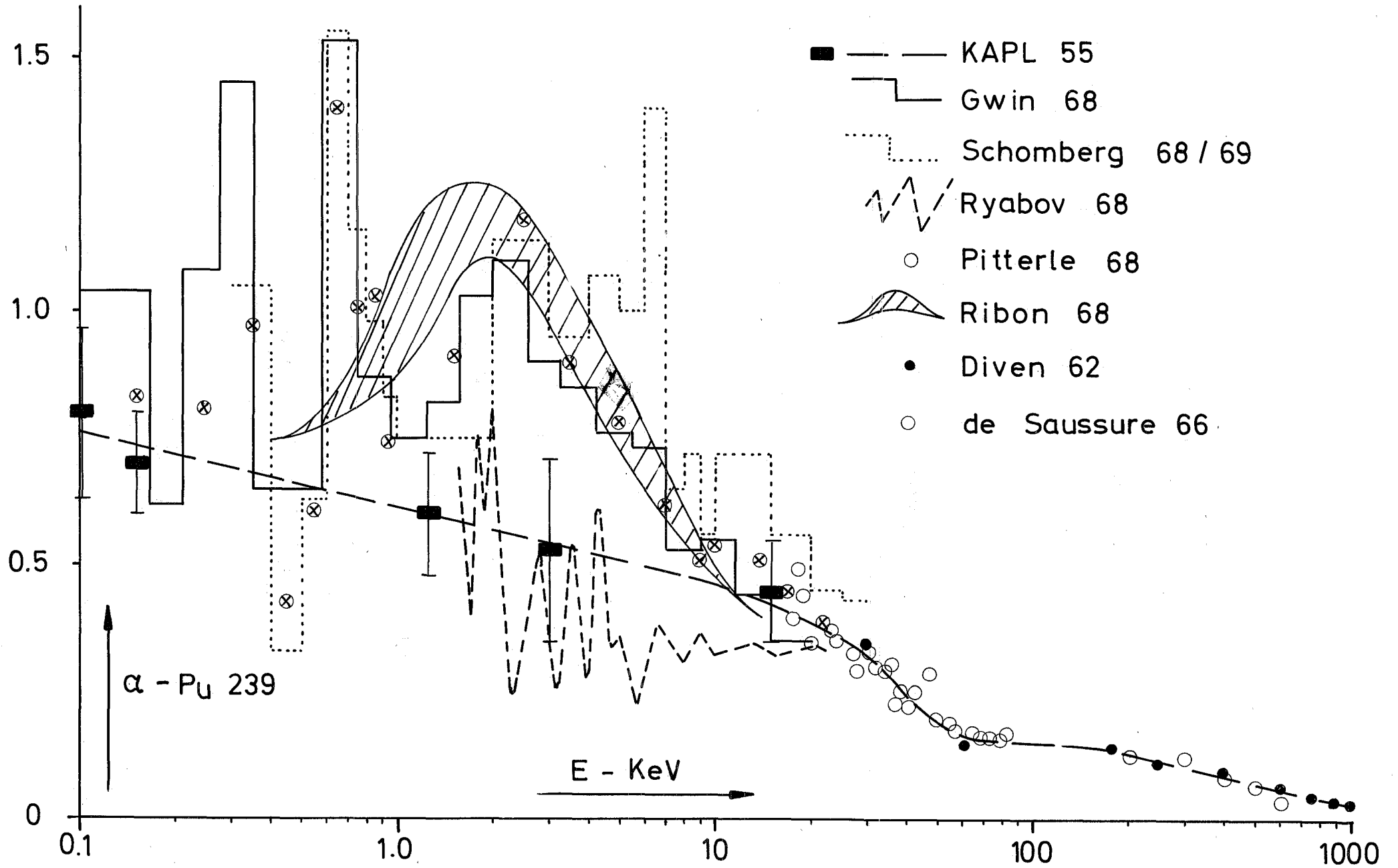




Abbildung 3

$\alpha$  - Pu 239

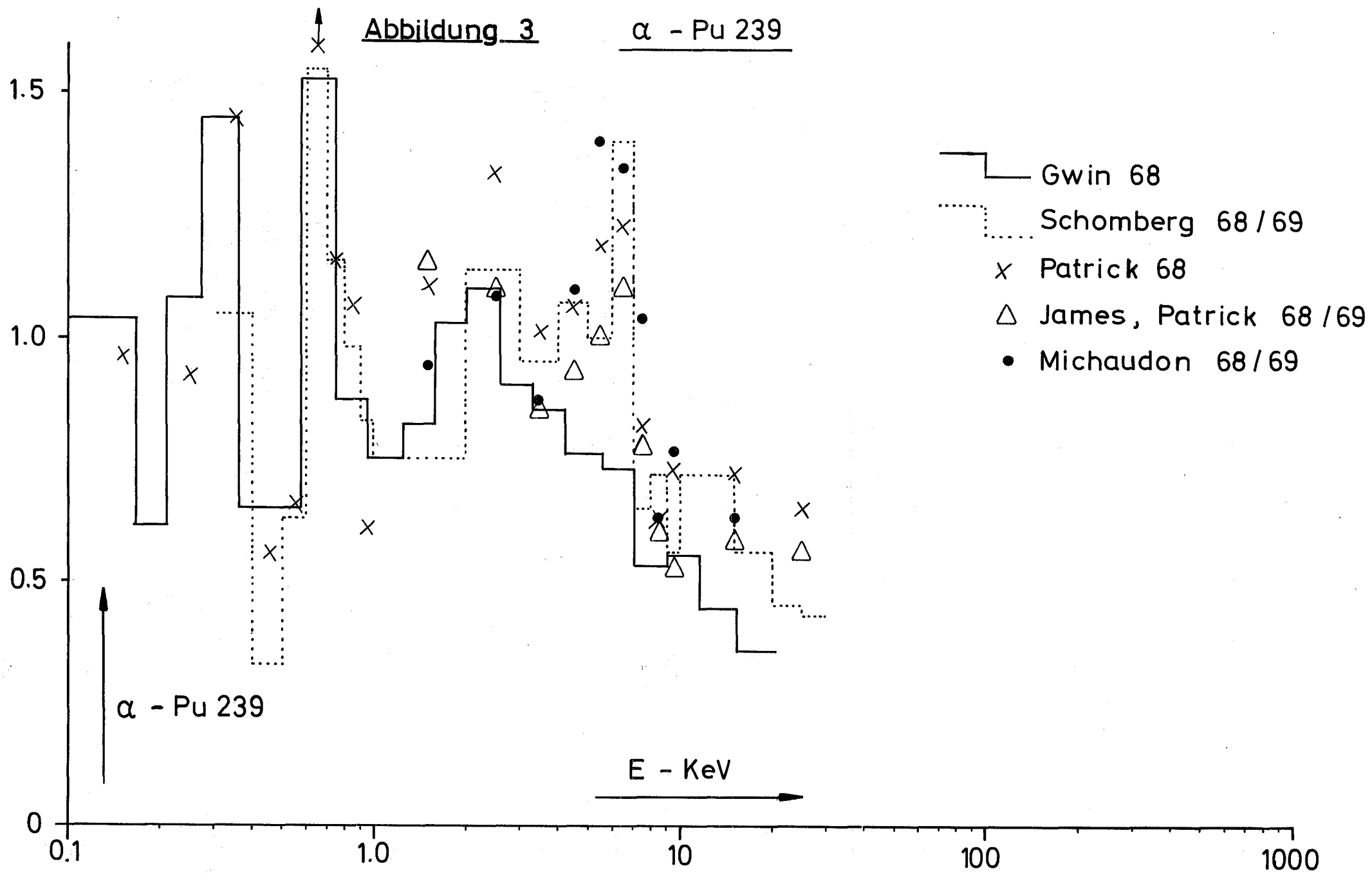


Abbildung 4

Spaltbarriere im Tröpfchen- und Schalenmodell

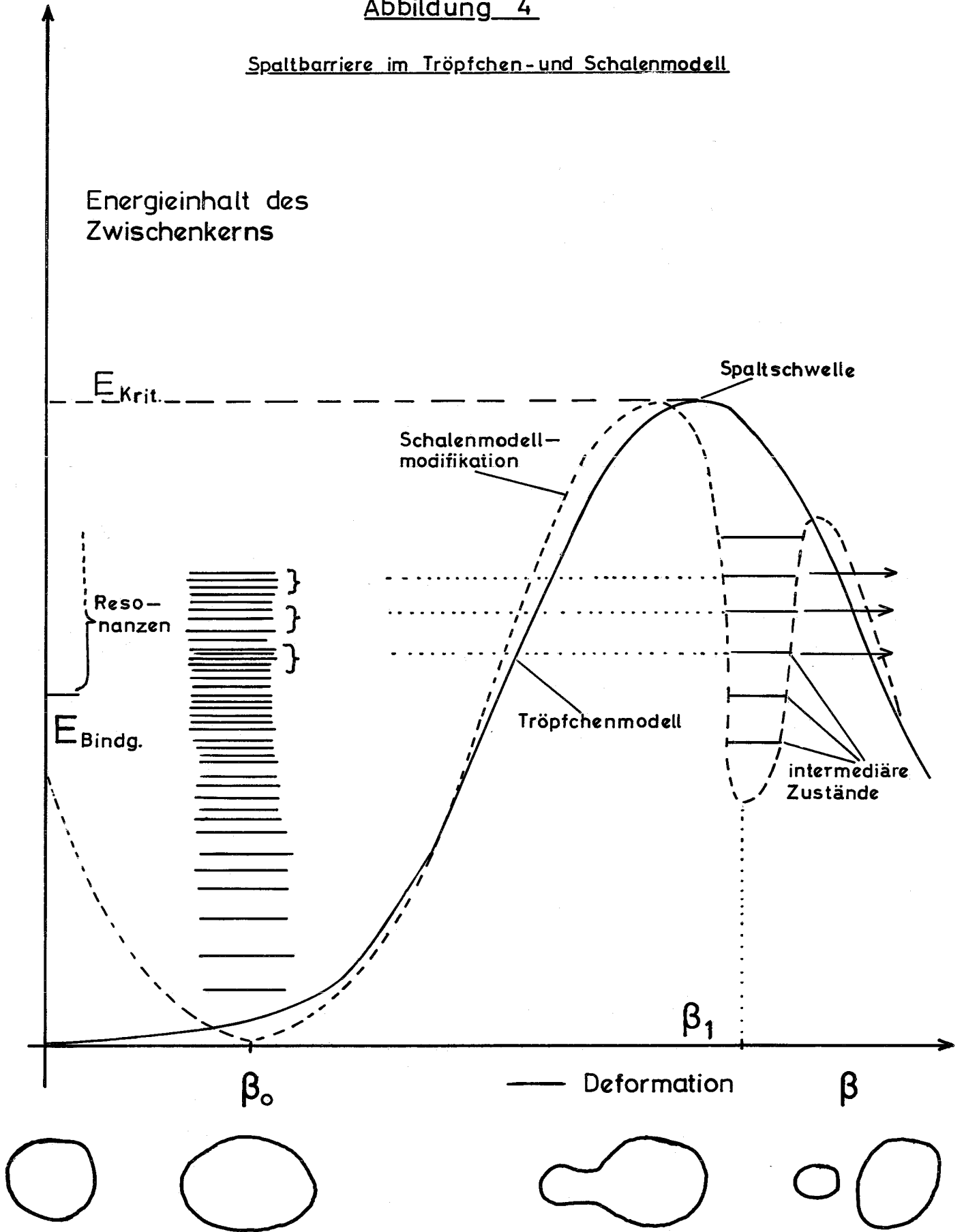
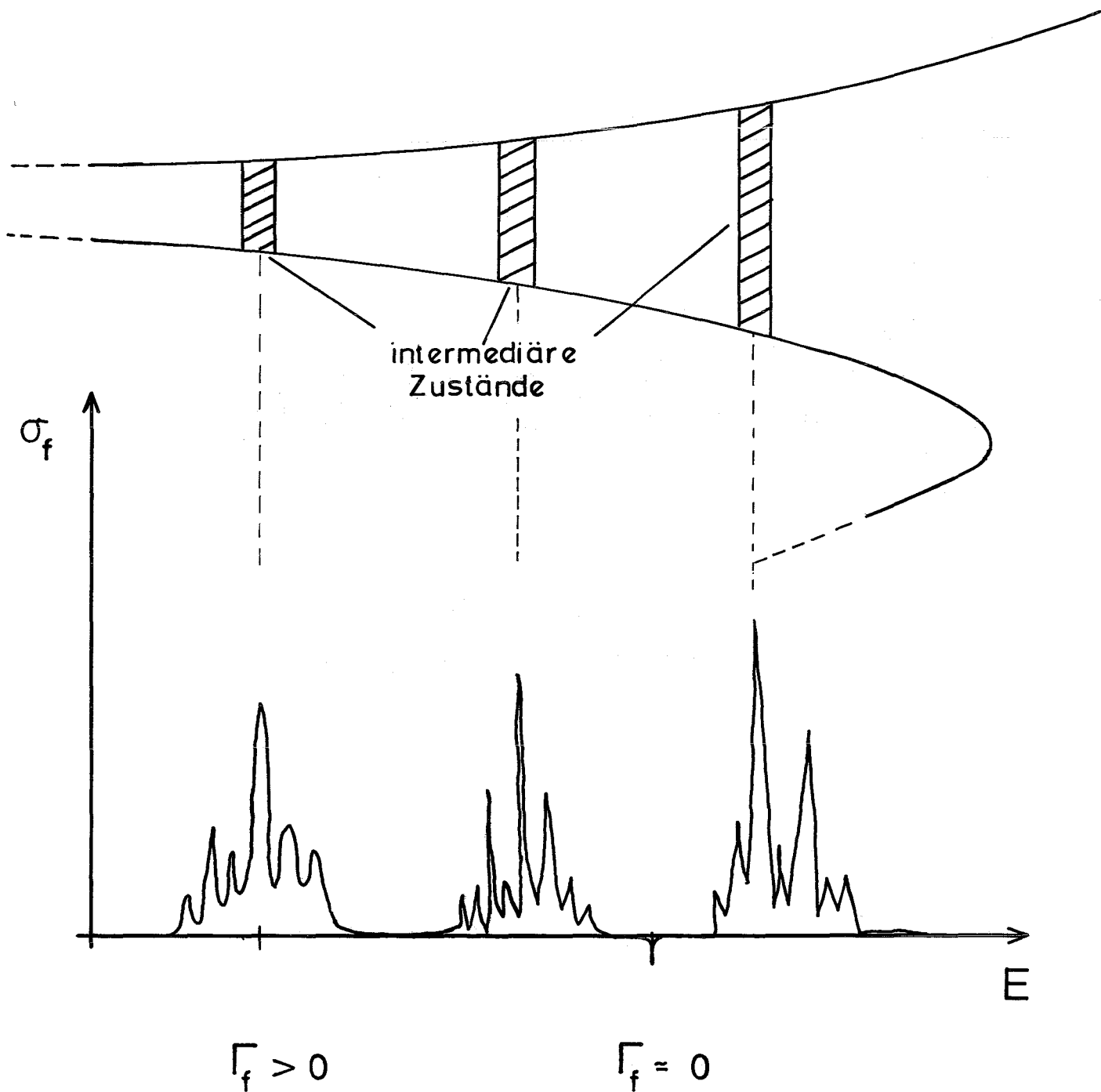


Abbildung 5

Energieabhängigkeit des Spaltquerschnitts im Bereich  
„intermediärer“ Zustände unterhalb der Spaltschwelle



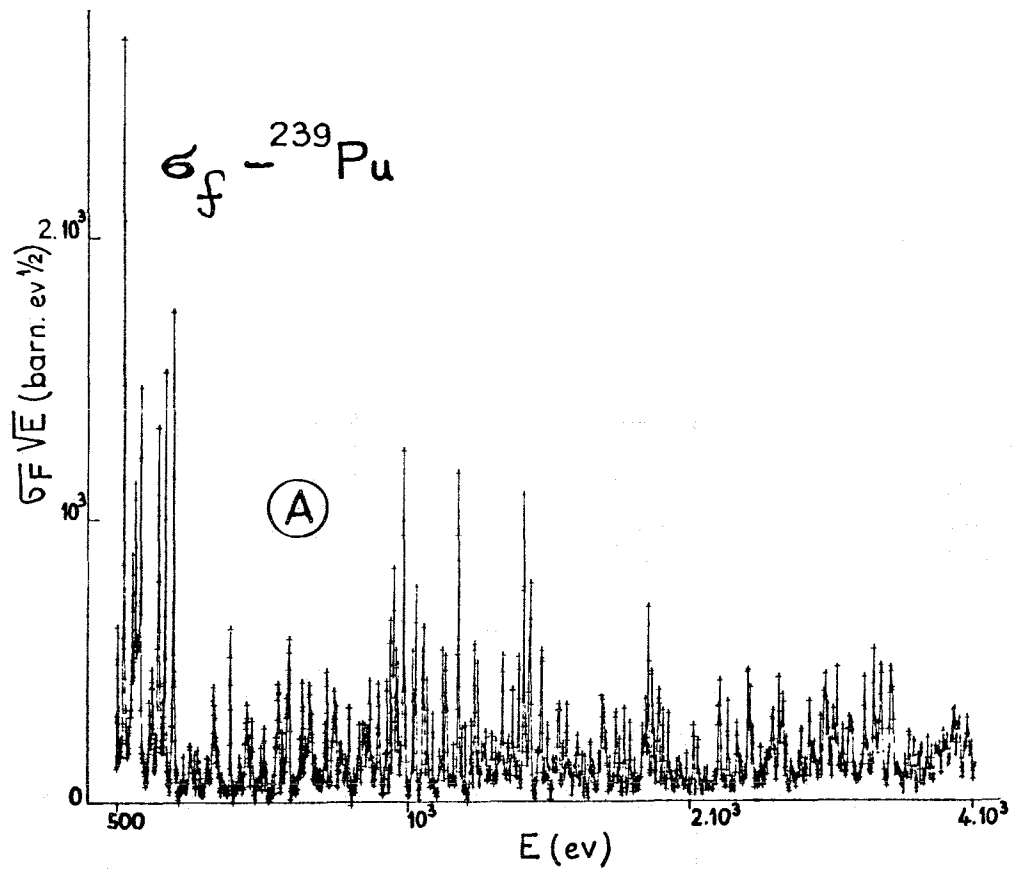


Abbildung 6

$\sigma_f$  - Pu 239 aus Messungen von Blons et al. (15)

Abbildung 7

$\sigma_f$  - Pu 239

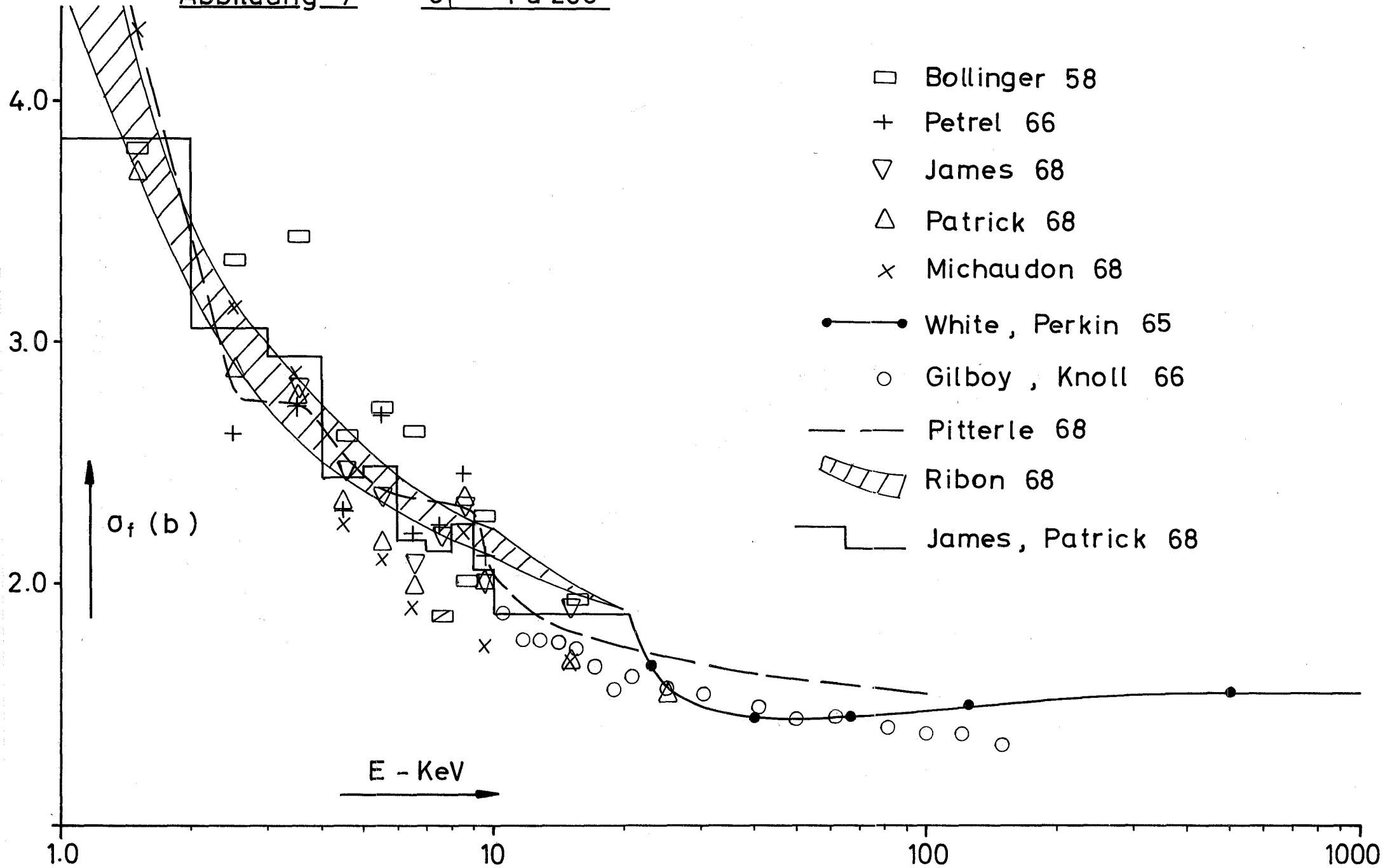


Abbildung 8  $\sigma_\gamma - U238$

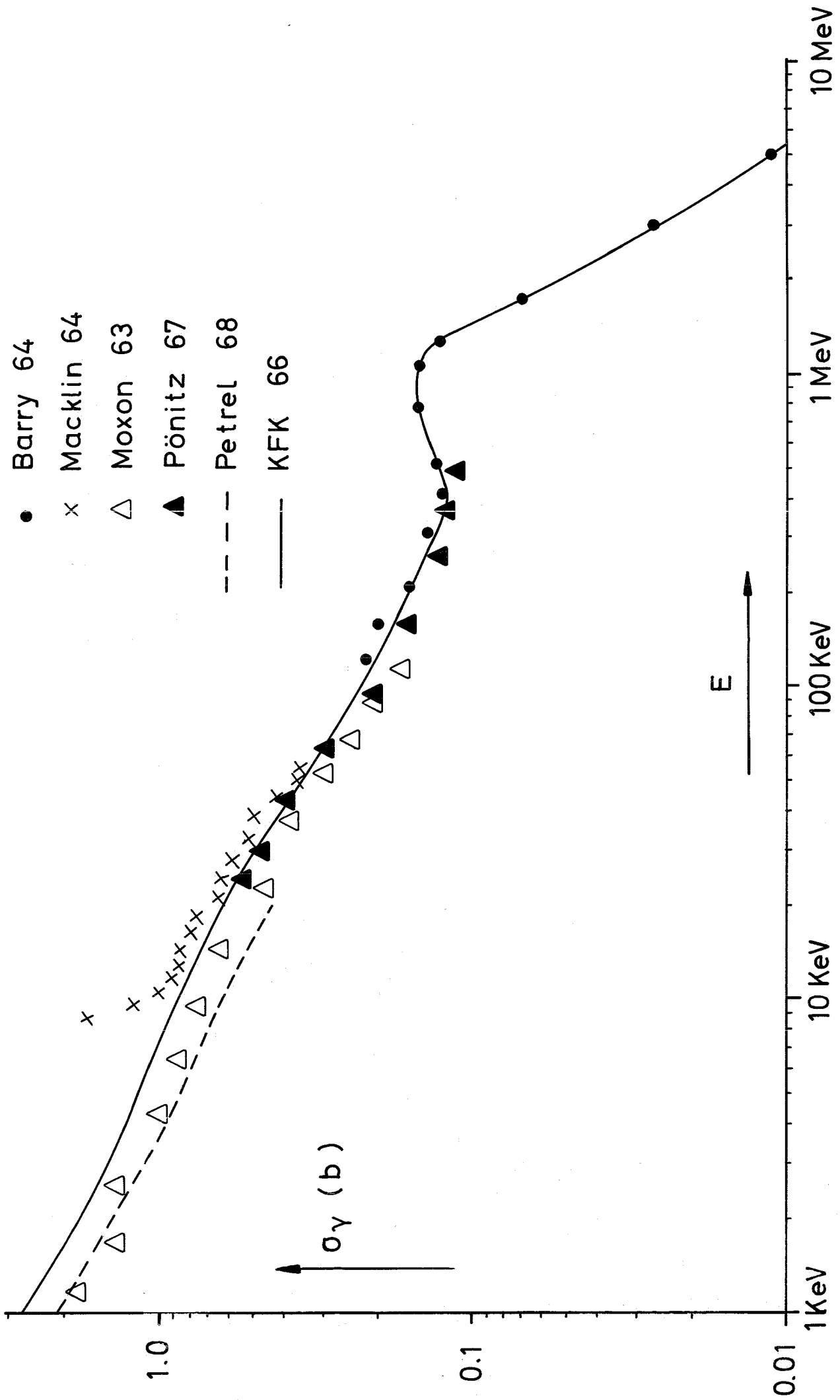


Abbildung 9

$\sigma_\gamma, \sigma_f$  - Pu 240

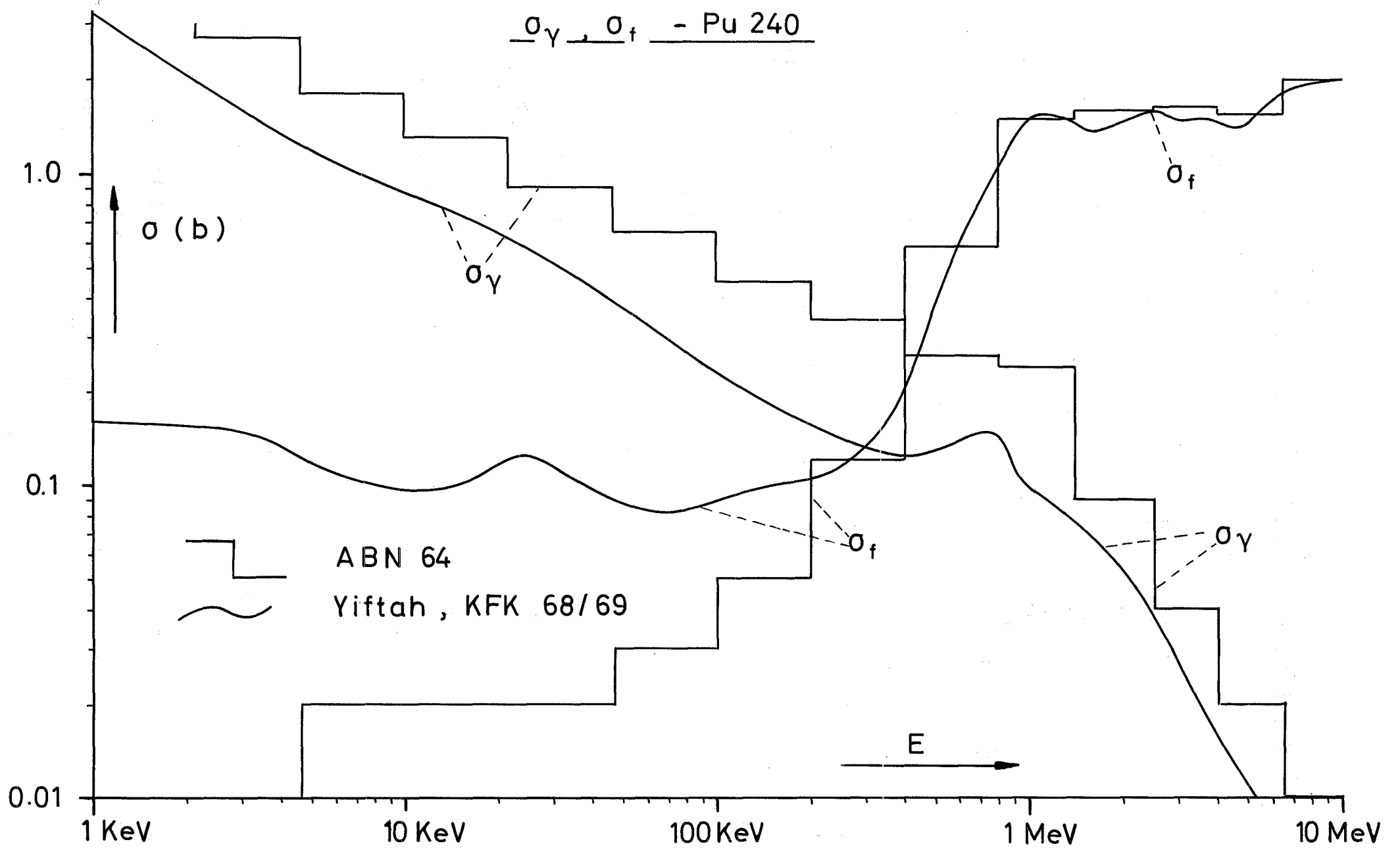


Abbildung 10  $\overline{V}_{\text{spontan}} - \text{Cf } 252$



$\pm 1\%$

Asplund 63  
Flüss. Szint.



Diven 63  
Flüss. Szint.



White 67  
Mn SO<sub>4</sub> - Bad



Axton 69  
Mn SO<sub>4</sub> - Bad



Moat 61  
Flüss. Szint.



Colvin 65  
Borpile



de Volpi 66  
Mn SO<sub>4</sub> - Bad



Mittelwert

