

Juni 1972

KFK 1623

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Untersuchungen zur Energieabhängigkeit von w (Energieverlust/Ionenpaar) für Protonen in Wasserstoff, Methan und H₂-CH₄-Gemischen im Hinblick auf Neutronenspektrumsmessungen mit Rückstoßprotonen-Proportionalzählrohren unterhalb 25 keV

W. Breitung



Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H. KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Juni 1972

KFK-1623

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Untersuchungen zur Energieabhängigkeit von w (Energieverlust/Ionenpaar) für Protonen in Wasserstoff, Methan und H₂-CH₄-Gemischen im Hinblick auf Neutronenspektrumsmessungen mit Rückstoßprotonen-Proportionalzählrohren unterhalb 25 keV

Wolfgang Breitung

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

Zusammenfassung

Eine gebräuchliche Methode zur Bestimmung von Neutronenspektren ist die Messung mit Hilfe von Protonenrückstoß-Proportionalzählrohren. Voraussetzung hierzu ist die Kenntnis des spezifischen Energieverlustes w von Protonen im Zählgas.

Da bisher im Energiebereich unter 25 keV nur wenig über w bekannt ist, wurde in dieser Arbeit der spezifische Energieverlust von Protonen in den üblicherweise benutzten Zählgasen Wasserstoff, Methan und H₂-CH₄-Gemischen unterhalb von 25 keV gemessen. Der Vergleich mit den bisherigen Veröffentlichungen zeigt, daß man hinsichtlich der Genauigkeit, mit der w gemessen werden konnte, zwei Energiebereiche unterscheiden muß. Unterhalb von 10 keV weichen die Ergebnisse der verschiedenen Autoren so weit voneinander ab, daß die angestrebte Genauigkeit in der Flußmessung von 10% nicht gewährleistet ist. Für Energien, größer als 10 keV kann man auf Grund der Übereinstimmung dieser Messung mit den bislang veröffentlichten Arbeiten annehmen, daß w in den genannten Zählgasen so genau bekannt ist, daß Neutronenflüsse mit der Protonenrückstoß-Methode bis auf einen Fehler von max. 10% bestimmt werden können.

Abstract

A method in case for the destination of neutron spectra is the measurement with proton recoil proportional counters. A necessary prerequisite to this is the knowledge of the specific energy loss w of protons in the counting gas. Since only little has been known so far about w in the energy region below 25 keV, the specific energy loss for protons was measured in this work in the commonly used counting gases hydrogen, methane and H2-CH4-mixtures below 25 keV. A comparison with existing publications shows that two energy regions must be distinguished with respect to the accuracy with, which w could be measured. Below 10 keV, the results of the different authors deviate from each other so much that the accuracy of 10% envisaged in the flux measurement is not guaranteed. For energies greater than 10 keV it can be assumed, on the basis of the agreement between these measurements and the work published so far that w is known with sufficient accuracy in the counting gases mentioned to determine the neutron flux by the proton recoil method with an error of less than 10 %.

Inhaltsverzeichnis

- 1. Einleitung
- 2. Grundlagen der Rückstoßprotonen-Methode
 - 2.1. Theorie der Rückstoßprotonen-Methode
 - 2.2. Stand der theoretischen und experimentellen Bestimmung von w
- 3. Experiment
 - 3.1. Prinzip
 - 3.2. Meßapparatur
 - 3.2.1. Bremszeitspektrometer
 - 3.2.2. Proportionalzählrohre
 - 3.2.3. Meßelektronik
 - 3.3. Meßablauf
 - 3.4. Auswerteverfahren
 - 3.5. Meßergebnisse
- 4. Vergleich mit bisherigen Messungen
 - 4.1. Wasserstoff
 - 4.2. Methan
 - 4.3. Wasserstoff-Methan-Gemische
- 5. Einfluß der Energieabhängigkeit von w auf die Bestimmung von Neutronenspektren
- 6. Zusammenfassung
- 7. Literaturverzeichnis

(1,1) = (1,1) + (1,1

 $(1,1,2,\dots,n_{n-1}) \in \mathbb{R}^{n-1} \to \mathbb{R}^{n-1} = \mathbb{R}^{n-1} \to \mathbb{R}^{n-1}$

(1+2) = (1+2) + (1+2

الله المحمد ا المحمد المحمد

and the second second

~/

1. Einleitung

Protonenrückstoß-Proportionalzählrohre werden für Neutronenspektrumsmessungen im Energiebereich von etwa 1 keV bis 10 MeV benutzt. Die einfallenden Neutronen erzeugen durch elastische Stöße in den wasserstoffhaltigen Gasen Rückstoßprotonen, die das Zählgas ionisieren. Aus der erzeugten Ionisationsverteilung läßt sich das Neutronenspektrum berechnen, wenn man den pro gebildeten Ionenpaar auftretenden Energieverlust der Protonen dE/dI = w(E) als Funktion der Protonenenergie kennt.

Die obere Energiegrenze der Protonenrückstoßmethode ist bestimmt durch das endliche Bremsvermögen des benutzten Zählgases; wenn die Reichweite der Rückstoßprotonen wesentlich größer wird als der Zählrohrdurchmesser, lassen sich die Verfälschungen der Ionisationsspektren durch nur teilweise im Gas abgebremste Protonen (Wandeffekte) nicht mehr korrigieren. Die untere Grenze des Meßbereichs ist seit der Entwicklung einer γ -n-Diskriminations-Methode $\langle \underline{1} \overline{/}$ im Prinzip nur dadurch bestimmt, daß die Rückstoßprotonen Impulse erzeugen müssen, die über dem Rauschuntergrund der Meßelektronik liegen. Dazu sind etwa 10 bis 20 Ionenpaare nötig, was einer Protonenenergie von etwas unterhalb 1 keV entspricht.

Bei hohen Protonenenergien ist w für die üblicherweise benutzten Gase - Wasserstoff, Methan und H₂-CH₄-Mischungen konstant. Unterhalb etwa 100 keV bei Methan und unterhalb 10 keV bei Wasserstoff hängt w jedoch von der Protonenenergie ab. Über den genauen Verlauf von w in diesen Energiebereichen ist bisher nur wenig bekannt. Andererseits kann der meßtechnisch bis zu 1 keV erschlossene Energiebereich nur genutzt werden, wenn die Energieabhängigkeit von w genügend genau bekannt ist.

Der Zweck dieser Arbeit war es

 a) diese Energieabhängigkeit von w für Wasserstoff, Methan und H₂-CH₄-Gemische im Energiebereich unterhalb von 25 keV zu untersuchen und

- 1 ·

 b) den Einfluß der Energieabhängigkeit auf die Genauigkeit von Spektrumsmessungen abzuschätzen.

Nach einer Einführung in die Protonenrückstoß-Methode (Kapitel 2) wird in Kapitel 3 das Experiment und die Auswertung der Messung beschrieben und eine Darstellung der Meßergebnisse gegeben. Es folgt die Diskussion der Meßergebnisse (Kapitel 4) sowie in Kapitel 5 eine abschließende Betrachtung über den Einfluß der Energieabhängigkeit von w auf die Ergebnisse von Rückstoßprotonenmessungen im unteren Energiebereich.

- 2 -

2. Grundlagen der Rückstoßprotonen - Methode

Für die Neutronenspektroskopie bieten Protonen als Rückstoßkerne mehrere Vorteile:

- a) das Neutron kann seine gesamte Energie an das Proton abgeben,
- b) der n-p-Streuquerschnitt ist unterhalb 10 MeV a satisficient isotrop und a satisficient and a satisficient statement of a satisfic term.
- c) der n-p-Streuquerschnitt ist der am genauesten
- bekannte Wirkungsquerschnitt.

Die Auswahl des Zählgases richtet sich nach der Energie der nachzuweisenden Neutronen. Für Messungen im Energiebereich oberhalb 100 keV wird häufig Methan benutzt, weil infolge seines relativ hohen Bremsvermögens die Wandeffekte im Zählrohr klein gehalten werden können. (Die Reichweite von 100-keV-Protonen in 1 atm CH_4 beträgt 1,1 mm.) Allerdings wird bei Methan $/\overline{197}$ das Rückstoßprotonenspektrum im unteren Energiebereich durch Kohlenstoff-Rückstoßkerne verfälscht, so daß man für Messungen unter etwa 100 keV praktisch ausschließlich Wasserstoff benutzt. Häufig werden jedoch dem Wasserstoff geringe Mengen (bis zu 20%) Methan zugesetzt, weil Methan den Gasverstärkungsprozess stabilisiert, d.h. hohe Gasverstärkungen ohne Hochspannungsdurchbrüche ermöglicht.

2.1. Theorie der Rückstoßprotonenmethode

In diesem Abschnitt soll kurz gezeigt werden, wie man mit Hilfe der Stoßgesetze von einer gemessenen Ionisationsverteilung N (I) auf das Spektrum der einfallenden Neutronen schließen kann $\sqrt{27}$.

Ein Neutron der Energie E_n im Laborsystem (LS) überträgt beim Stoß mit einem Kern der Massenzahl A die Rückstoßenergie E (ebenfalls im LS), die folgendermaßen vom Streu-

> n de la companya de l La companya de la comp La companya de la comp

winkel Θ des Neutrons im Schwerpunktsystem (SP-System) abhängt:

$$E = \frac{2A}{(1+A)^2} \cdot E_n (1 - \cos \theta)$$
 (1)

Wenn σ_i der integrale Streuquerschnitt und σ (Θ) der differentielle Streuquerschnitt im SP-System sind, dann ist der Quotient σ (Θ) d Ω / σ_i die Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein Neutron um den Winkel Θ in das Raumwinkelelement d $\Omega = 2 \Pi \sin \Theta$ d Θ gestreut wird. Deshalb ergibt sich für die Wahrscheinlichkeit, daß der Rückstoßkern eine Energie zwischen E und E + dE aufnimmt:

p(E) dE =
$$\frac{\sigma(\theta) \cdot 2\pi \sin \theta d \theta}{\sigma_i}$$

Aus (1) folgt durch Differentiation $dE/d\theta$ und damit

p (E) =
$$\frac{\sigma(\Theta)}{\sigma_i} \cdot \frac{\Pi}{E_n} \cdot \frac{(A+1)^2}{A}$$

Für Protonen mit A = 1 ist σ (Θ) unter 10 MeV isotrop, d.h. es gilt:

$$\sigma (\Theta) = \frac{\sigma_i}{4\pi}$$

$$p (E) = \frac{1}{E_n} = \text{konstant für } E < E_n$$

$$p (E) = 0 \qquad \text{für } E > E_n$$

Eine kontinuierliche Neutronenverteilung φ (E_n) (Neutronen/ $\mathbf{s} \cdot \mathbf{cm}^2 \cdot \mathbf{keV}$) ergibt somit folgende Rückstoßprotonenverteilung (pro keV):

$$P(E) = NT \int_{\varepsilon}^{\infty} \frac{1}{E_n} \cdot \sigma_i (E_n) \cdot \varphi (E_n) dE_n$$
(2)

Dabei ist N die Zahl der Protonen im Zählrohr und T die Meßzeit. Durch Differentiation von (2) nach E folgt:

$$\varphi$$
 (E) = $\frac{1}{NT}$, $\frac{E}{\sigma(E)}$, $\frac{dP(E)}{dE}$ (3)

Dies ist die Beziehung zwischen dem gesuchten Neutronenfluß φ (E) und der sich im Zählrohr einstellenden Rückstoßprotonenverteilung P(E). Da man mit dem Proportionalzählrohr aber eine Impulshöhenverteilung N(I) mißt, muß noch der Zusammenhang zwischen Protonenenergie E und erzeugter Ionisation I berücksichtigt werden. Da E und I in einer eindeutigen Beziehung zueinander stehen, gilt (Abb. 1),

P (E) dE = N(I) dI
P(E) =
$$\frac{N(I)}{dE/dI} = \frac{N(I)}{w(I)}$$
,

wenn P (E) dE die Anzahl der Protonen im Energieintervall dE und N(I) dI die Anzahl der Ionisationsprozesse in dem dE entsprechenden Ionisationsintervall dI bedeutet.

Die differentielle Größe w = dE/dI muß also bekannt sein, damit man die gemessene Ionisationsverteilung in die

entsprechende Verteilung der Rückstoßprotonen umrechnen kann. Aus P(E) ergibt sich dann mittels Gleichung (3) der gesuchte Neutronenfluß φ (E).

 2.2. Stand der theoretischen und experimentellen Bestimmung von w

Ein geladenes schweres Teilchen, das in Materie abgebremst wird, verliert den überwiegenden Teil seiner Energie durch Wechselwirkungen seines bewegten Coulombfeldes mit den Elektronen der Bremssubstanz. Je nach der Größe des übertragenen Impulses werden diese auf verschiedene Anregungsniveaus gehoben oder sogar vom Molekül getrennt. Die freigewordenen Elektronen können jeden Energiebetrag bis zu einem Maximalwert E_{max} mitnehmen, der von der Energie E und Masse M des gebremsten Teilchens sowie dem Ionisationspotential I des Bremsmediums abhängt, $(E_{max} = 4 \cdot m_e \cdot E/M-I;$ das sind bei 50 keV-Protonen in molekularem Wasserstoff 94 eV). Abb. 2 zeigt die Energieverteilung der durch 50 -und 100-keV-Protonen erzeugten freien Elektronen in Wasserstoff $\sqrt[2]{3}7$:

Diese freien Elektronen haben verschiedene Möglichkeiten, ihre Energie abzugeben $\langle \overline{4} \overline{7} \rangle$. Unterhalb 0.05 eV ist dies nur durch elastische Stöße mit Wasserstoffmolekülen möglich. Oberhalb 0.05 eV können die Elektronen Rotationszustände anregen, oberhalb von 0.52 eV werden Molekülschwingungen und ab einigen eV Elektronenanregungen möglich. Wenn die Elektronenenergie schließlich größer als das Ionisationspotential von H₂ (15,4 eV) ist, können auch Sekundärelek-

· 6 -

tronen erzeugt werden. Die Energie, die das ionisierende Proton an die Gesamtheit der ausgelösten Elektronen abgegeben hat, verteilt sich auf diese, miteinander konkurrierenden Reaktionen, wobei der Beitrag der Sekundärionisationen zur Gesamtionisation von der Form der Energieverteilung der Primärelektronen abhängt. Während der Abbremsung verliert das Proton ständig Energie, und entsprechend ändert sich daher, wie aus Abb.2 hervorgeht, die Energieverteilung der Primärelektronen, so daß die erzeugte Sekundärionisation in sehr komplexer Weise von der Protonenenergie abhängt. Die durch Sekundärprozesse entstehende Ionisation ist keineswegs vernachlässigbar, sie ist vielmehr von der gleichen Größenordnung wie die Primärionisation.

Die bei der Bremsung von positiv geladenen Teilchen auftretenden Prozesse werden mit abnehmender Energie noch dadurch kompliziert, daß mit wachsender Wahrscheinlichkeit Elektronen eingefangen werden. Wenn das Proton etwa auf die Ge schwindigkeit des umlaufenden Wasserstoffelektrons (v_o) abgebremst ist, nimmt der Wirkungsquerschnitt für Anlagerung eines Elektrons stark zu. Nach der Anlagerung bewegt sich das Proton als neutrales Wasserstoffatom und kann daher keine Energie über das Coulombfeld abgeben, sondern nur noch durch direkte Stöße mit Molekülen. Da solche Stöße wieder zum Verlust des Elektrons führen können, ändert sich der Ladungszustand ständig und damit auch der Mechanismus der Energieübertragung. In Wasserstoff sind z.B. die Wirkungsquerschnitte für Elektroneneinfang und Elektronenverlust bei 25 keV gleich groß. Die Protonengeschwindigkeit ent spricht dann ziemlich genau der des Wasserstoffelektrons $v_0 = 2.18 \cdot 10^6 \text{ m/s.}$

Die geschilderte Vielzahl von Prozessen, die während der Bremsung geladener Teilchen auftreten, macht deutlich, daß die Berechnung der erzeugten Ionisation auf erhebliche Schwierigkeiten stößt. Man benötigt die totalen und differentiellen Ionisationsquerschnitte, diejenigen für alle Elektronenanregungen, für Molekülschwingungen, Rotationszustände und elastische Streuung und zwar sowohl für Protonen als auch für Elektronen. Von Protonen müssen weiterhin die Querschnitte für Elektroneneinfang und -verlust bekannt sein. Wegen der großen Zahl niederenergetischer Elektronen, die bei der Abbremsung erzeugt werden (vgl. Abb.2), bestimmen die Wirkungsquerschnitte im Bereich niederer Elektronenenergien auch die von hochenergetischen Protonen erzeugte Ionisation. Da aber über den Verlauf der Wirkungsquerschnitte, insbesondere im niederenergetischen Bereich, bisher nur wenig bekannt ist, ist die Berechnung der erzeugten Ionisation bisher nicht möglich.

Somit ist man auf die experimentelle Bestimmung der Energie-Ionisation-Beziehung angewiesen.

Wenn man die von einem Proton bekannter Energie erzeugte Ionisation mißt, so ist der Quotient

W =
$$\frac{E_0}{I_{ges}}$$
 = Anfangsenergie
insgesamt erzeugte Ionisation

der mittlere Energieverlust pro Ionenpaar. In den meisten Veröffentlichungen wird die Größe W (E) benutzt, die sich aber in den hier interessierenden differentiellen Energieverlust pro Ionenpaar w = dE/dI umrechnen läßt:

W (E) =
$$\frac{E}{I \text{ ges}}$$
 = $\frac{E}{u\epsilon}$ = $\frac{E}{\sqrt{\frac{dE}{W(E)}}}$ oder $\int \frac{dE}{w(E)}$ = $\frac{E}{W(E)}$

Differenziert ergibt sich:

$$\frac{1}{w(E)} = \frac{d}{dE} \left(\frac{E}{W(E)}\right).$$
(5)

Die bisherigen Messungen in verschiedenen Gasen zeigen, daß W(E) merklich ansteigt, sobald die Geschwindigkeit der einfallenden Teilchen in die Größenordnung von v_o kommt $\sqrt{5}, \underline{67}$. Diese Änderung läßt sich durch

$$W = 1 + a \cdot \frac{v_0}{v} + b \cdot \frac{v_0}{v}^2$$
(6)

beschreiben, wobei a und b empirisch bestimmte und für das

untersuchte Gas charakteristische Konstanten sind. Eine Ausnahme bildet Wasserstoff, wo sich W(E) bis hinunter zu 10 keV nicht merklich verändert.

In Tabelle 1 sind die bisher für Wasserstoff und Methan veröffentlichten Messungen zusammengestellt. Die jeweiligen Ergebnisse werden in Kap.4 beim Vergleich mit den hier erhaltenen Meßwerten diskutiert.

TUDETTE I IIUNETE AIDEILEN ZUI DESCIMMUNIN VOI	Tabelle	1	Frühere	Arbeiten	zur	Bestimmung	von	W
--	---------	---	---------	----------	-----	------------	-----	---

Gas	Autor	Energiebereich	Methode
H ₂	Allen und F <u>er</u> guson <u>/</u> 7/	10 - 1000 keV	Monoenergetische Neu- tronen durch die Reak- tion T(p,n) ³ He und ⁷ Li(p,n) ⁷ Be Nachweis mit Propor- tionalzählrohren
	Rogers <u>/8</u> /	2 - 1000 keV	Monoenergetische Neu- tronen durch Trans- mission in Resonanz- materialien; Nachweis mit Proportionalzähl- rohren
	Werle et al. 297	1,5 - 20 keV	Messung mit der in dieser Arbeit beschrie- benen Methode
	Bennett /10/	1,5 - 10 keV	Indirekte Bestimmung von w durch Messung der Ionisationsver- teilung einer als be- kannt vorausgesetzten Neutronenverteilung
CH ₄	Allen und Ferguson <u>/7</u> /	25 - 1000 keV	wie bei Wasserstoff
	McClure u. Allenworth /11/	1 - 20 keV	Monoenergetische Pro- tonen aus Ionenbe- schleunigern mit mag- netischem Analysator. Nachweis in Detektor mit offenem Einschuß- fenster

Für Wasserstoff-Methan-Gemische gibt es bisher noch keine Untersuchungen des Zusammenhangs zwischen Protonenenergie und erzeugter Ionisation.

3. Experiment

3.1. Prinzip

Bei der Wechselwirkung von mondenergetischen Neutronen mit wasserstoffhaltigen Zählgasen entstehen, mit gleicher Wahrscheinlichkeit, Rückstoßprotonen mit Energien zwischen Null

und der Neutronenenergie E_n. Die größte gemessene Ionisation I_{max} rührt somit von Protonen der Energie E_n her.

Durch Variation der Neutronenenergie erhält man die Beziehung zwischen Protonenenergie und erzeugter Ionisation.

Abb.3 Theoretisches und experimentelles Ionisationsspektrum monoenergetischer Neutronen

In der Praxis ergibt sich anstatt der stufenförmigen Ionisationsverteilung ein langsamer Abfall, weil die Neutronen des Bremszeitspektrometers gaußförmig mit relativ großer Breite verteilt sind und weil das energetische Auflösungsvermögen der Zählrohre im Energiebereich unterhalb 25 keV bei etwa 10% liegt. Beide Effekte sollten den prompten, theoretischen Abfall der Ionisationsspektren symmetrisch zu I_{max} verformen, so daß der Ort des steilsten Abfalls von N (I) mit der maximalen Ionisation identifiziert werden kann. Die dazugehörige Protonenenergie ist gleich der bekannten mittleren Energie der gaußförmigen Neutronenverteilung.

3.2. Meßapparatur

Dieser Abschnitt erläutert die wesentlichen Bestandteile und die Funktionsweise der Meßapparatur. Sie setzt sich zusammen aus dem Bremszeitspektrometer, den Proportionalzählrohren und der Meßelektronik.

3.2.1. Bremszeitspektrometer

In einem Moderator großer Massenzahl werden kurzzeitig 14-MeV-Neutronen injiziert. In Blei sind sie nach etwa 100 ns durch inelastische Stöße unter das erste Anregungsniveau von 570 keV abgebremst und können danach nur noch Energie in elastischen Stößen verlieren. Nach Beendigung der inelastischen Moderierung weisen die Neutronen noch eine breite Energieverteilung auf, die aber während der elastischen Abbremsung enger wird, weil schnelle Neutronen pro Zeiteinheit häufiger stoßen und daher mehr Energie verlieren als langsame. Mit fortschreitender Bremszeit T nimmt die mittlere Energie E der Neutronenverteilung ab und zwar ergibt sich aus den Gesetzen des elastischen Stoßes:

$$E = \frac{C}{(T+t_0)^2}$$

Dabei berücksichtigt t_0 die inelastische Abbremsung während der ersten 100 ns. Eine Bestimmung der Konstanten C und t_0 durch die Untersuchung von Resonanzstellen verschiedener Substanzen /12/ ergab

$$E = \frac{185 \text{ keV } \mu \text{s}^2}{(\text{T+0.3 } \mu \text{s})^2}.$$

Diese Beziehung ist in Abb.4 grafisch dargestellt. Mit wachsender Abbremszeit verringert sich wegen des Ausflusses die Neutronendichte entsprechend Abb.5 relativ schnell $\langle \bar{1}3\bar{7} \rangle$. Daher sind bei Untersuchungen mit niederenergetischen Neutronen lange Meßzeiten erforderlich. Andererseits hat das Bremszeitspektrometer den Vorteil, daß sich sein Auflösevermögen mit abnehmender Neutronenenergie verbessert. Das theoretisch, durch den statistischen Verlauf des Abbremsprozesses bedingte, Auflösevermögen des Bremszeitspektrometers ist in Abb.6 dargestellt $\langle \bar{1}4\bar{7}$. Bei einer mittleren Energie von 1 keV, die sich nach einer Moderierungszeit von 13,3µs eingestellt hat, beträgt die Halbwertsbreite 35%. Sie steigt mit zunehmender Energie bis auf über 130% bei 25 keV.

Eine schematische Darstellung des Bremszeitspektrometers zeigt Abb.7.

(7)

- 12 -

3.2.2. Proportionalzählrohre

Bau und Füllung

Vom Experiment her ist es von Vorteil, dünne Zählrohre zu verwenden, weil dann die Elektronendriftzeiten klein sind. Wie später ersichtlich, werden die Unsicherheiten in der Zeitmessung und damit in den mittleren Neutronenenergien zum Teil durch die Elektronendriftzeiten verursacht. Um trotzdem eine große Nachweiswahrscheinlichkeit zu erreichen, sind lange Zählrohre günstig. Die beiden benutzten Zählrohre hatten eine Länge von 100 cm und eine Radius von 1,15 bzw. 2,4 cm. Die Anode bestand aus 50 mm dickem Wolframdraht.

Zur Füllung dienten hochreine Gase, deren maximale Verunreinigungen in Tabelle 2 angeführt sind.

Tabelle 2Verunreinigungen der Füllgase

Füllere	Reinheit	max. Verunreinigung (vpm)			
		H ₂ O	^N 2	°2	
Wasserstoff	99.9997	2	0.5	0.5	
Methan	99.99	5	30	5	

Vor dem Füllen wurden die Zählrohre - unter gleichzeitigem Aufheizen auf etwa 100^oC - auf 10⁻⁵ Torr evakuiert, um eine Verunreinigung der Gase während des Füllvorgangs auszu schließen. Es wurden neben den reinen Gasen Wasserstoff -Methan - Mischungen mit 1/6, 1/3 und 1/2 Volumenanteil Methan untersucht. In allen Fällen betrug der Fülldruck 0.5 atm.

Elektronendriftzeiten

Die Neutronenabbremszeit im Bremszeitspektrometer T wird experimentell durch Messung der Zeitdifferenz zwischen 14-MeV-Neutronenimpuls und Detektorsignal bestimmt. Diese Zeitdifferenz ist um die mittlere Driftzeit der Elektronen zum Zähldraht länger als die Abbremszeit T, so daß daher die mittlere Elektronendriftzeit bekannt sein muß. Bei den hier untersuchten kleinen Neutronenenergien kann man die Ionisation als punktförmig ansehen. (20-keV-Protonen haben in 0.5 atm H_2 eine Reichweite von 2 mm und in 0.5 atm CH_4 eine von 0.7 mm.) Die Zeit, die ein Elektron, das im Abstand r von der Zylinderachse entstand, braucht, um den Zähldraht vom Radius a zu erreichen, ist

$$t = \int_{a}^{r} \frac{dr}{v}.$$
 (8)

Die Driftgeschwindigkeit v hängt vom benutzten Gas ab und ist eine Funktion von $E/P / \sqrt{v} / cm / Torr /$, wobei die elektrische Feldstärke E im Zählrohr wiederum vom Radius abhängt:

$$E(r) = \frac{U}{r \ln b/a}$$

$$U$$

$$Betriebsspannung$$

$$b$$

$$Zählrohrradius$$

Zur Berechnung von t wurden die in $\langle \bar{1}5, 16, 1\bar{2} \rangle$ angegebenen Driftzeiten durch geeignete Funktionen so angenähert, daß insbesondere für kleine E/P-Werte eine gute Anpassung erreicht wurde, da dieser Bereich den Hauptbeitrag zur gesamten Driftzeit leistet. Bei dem hier benutzten Zählrohr mit 2,4 cm Radius hatte E/P an der Zählrohrwand den Wert O,25 V/cm/Torr (1700 V Betriebsspannung, O.5 atm Fülldruck) und stieg in der Richtung zum Zähldraht bis auf über 200 V/cm/Torr.

Da die Ionisationen gleichmäßig verteilt über das Zählrohrvolumen auftreten, kommen alle Driftzeiten zwischen O und t_{max} vor, wobei t_{max} die Zeit ist, die ein an der Wand entstandenes Elektron benötigt, um bis zum Zähldraht zu driften. Folglich läßt sich nur eine mittlere Verzögerungszeit t_D angeben, die berücksichtigt, daß lange Zeiten wegen der Zylindergeometrie häufiger vorkommen als kurze (Abb.10): (9)

$$t_{\rm D} = \frac{\int\limits_{a}^{r} t(r) \cdot n \cdot 2\pi r \, dr}{n \cdot b^2 \pi}$$

n = konstante Dichte der Ionisationen

< 1 (L)

e i ser

Abb.10 Zählrohrdimensionen

Im Falle des Wasserstoffs läßt sich die Driftgeschwindigkeit sehr gut durch eine Wurzelfunktion approximieren (Abb.8). Dann erhält man:

$$v\left(\frac{E}{P}\right) = k_{1} \left(\frac{E}{P}\right)^{1/2} = k_{2} \left(\frac{1}{r}\right)^{1/2}$$

$$t(r) = \int_{a}^{r} dr/k_{2} \cdot \left(\frac{1}{r}\right)^{1/2} = k_{3} \cdot r^{3/2} \quad (f \ddot{u} r \ a \ll r)$$

$$t_{D} = \frac{\int_{a}^{b} k_{3} r^{3/2} \cdot n \cdot 2\pi r dr}{n \ b^{2} \pi} = \frac{4}{7} \cdot k_{3} b^{3/2} = \frac{4}{7} \cdot t_{max}$$

Bei Methan und Wasserstoff-Methan-Gemischen wurde v(E/P)durch einen Polygonzug genähert, damit t(r) stückweise berechnet (Gl.8) und so t_D bestimmt (Gl.9) (Abb.9). In Tabelle 3 sind die berechneten mittleren Driftzeiten aufgeführt:

Tabelle 3

Mittlere Elektronendriftzeiten

	Con		· · · · ·	Zählrohrradius				
	Gđ	.S	••••••••••••••••••••••••••••••••••••••	2,4	cm		1,15 cm	
^H 2				1,4	μs	и , _	0.45 µs	
$\frac{5}{6}$ H ₂	+	$\frac{1}{6}$ CH ₄		s'		a - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 - 100 -	0.12	
$\frac{2}{3}$ H ₂	+	$\frac{1}{3}$ CH ₄					0.09	
$\frac{1}{2}$ H ₂	+	$\frac{1}{2}$ CH ₄					0.07	
CH4				0.2	μS		0.06	

Energieeichung

Das Spannungssignal an der Anode des Zählrohrs ist der gesamten im Zählrohr erzeugten Ionisation und folglich der Primärionisation proportional. Gemessen wird die Ionisation relativ zu einer Eichionisation, die von Teilchen bekannter Energie erzeugt wird. Folgende Eichmöglichkeiten bieten sich an:

a) Zusatz von Gasen, die bei Reaktionen mit thermischen Neutronen eine bekannte Energie freisetzen:

³He (n,p)T Q = 764 keV (σ_{th} = 5000 b) ¹⁴N (n,p)C¹⁴ Q = 615 keV (σ_{th} = 1.75 b)

- b) Eichung mit monoenergetischen Neutronen aus Beschleunigern
- c) Eichung mit monoenergetischen Neutronen von radioaktiven γ -n-Quellen, wie z.B. 26-keV-Neutronen aus der Sb-Be-Quelle; $\sqrt{187}$.

In dieser Arbeit wurden die Ionisationen relativ zu der durch die ³He (n,p)T-Reaktion erzeugten Ionisation gemessen. Der Zählrohrfüllung wurden einige Promille ³He zugesetzt, die Eichung erfolgte mit Neutronen einer moderierten 5C-Am-Be-Quelle. Die Reaktionsenergie von 764 keV verteilt sich auf das Triton (191 keV) und das Proton (573 keV). Das dabei entstehende Ionisationsspektrum hat die in Abb.11 gezeigte Form:

Bis Kanal 15 wurden Rauschimpulse registriert. Der nachfolgende Anstieg bei Kanal 30 rührt von Tritonen her, deren zugehöriges Proton auf die Zählrohrwand traf, bevor es eine merkliche Energie an das Zählgas abgeben konnte. Die Reichweite der 573 keV Protonen beträgt in diesem Beispiel 4,8 cm und ist daher größer als der Zählrohrdurchmesser. Die Häufigkeitsverteilung der Protonenspuren fällt dann infolge der Zylindergeometrie sehr stark ab, wenn die Spurenlänge in die Größenordnung des Zählrohrdurchmessers kommt. (In Abb.11 entspricht das etwa Kanal 50.) Nur diejenigen Reaktionen, bei denen die Protonen in einem kleinen Winkel zum Zähldraht fliegen, tragen zum "full-energy" Peak bei 764 keV bei. Mit dem 764-keV-Peak (bzw. der bei 191 keV liegenden Triton-Kante) läßt sich die Ionisationsachse in "keV-Einheiten" eichen. Unter der Ionisation "1 keV" ist dann 1/764 der Ionisation des 764-keV-Peaks zu verstehen, der der vollständigen Abbremsung von Triton und Proton im Zählgas entspricht.

Die Vorteile dieser Eichmethode sind:

- a) Die Eichung ist leicht reproduzierbar und stellt zugleich eine Funktionsprüfung des Zählrohrs dar,
- b) aus der Breite des 764-keV-Peaks läßt sich die Zählrohrauflösung abschätzen.

3.2.3. Meßelektronik

Es handelt sich hier um ein gepulstes Experiment $\langle \overline{9} \overline{7} \rangle$ zur Messung des Zusammenhangs zwischen Protonenenergie und erzeugter Ionisation, bei dem von jedem Zählrohrimpuls zwei Eigenschaften registriert werden:

- 1.) der Zeitpunkt seines Auftretens nach dem 14-MeV-Neutronenimpuls und
- 2) seine Amplitude.

Dementsprechend verzweigt sich das Blockdiagramm (Abb.12) hinter dem Vorverstärker. Der untere Ast wertet die Impulshöhe aus, die ein Maß für die entstandene Ionisation ist, und der obere die Zeitinformation, aus der sich die zugehörige Protonenenergie ergibt. Diese beiden Signale werden,

- 20 -

4

begleitet von einem Koinzidenzimpuls, in einem zweidimensionalen Speicher, der aus 32 Zeitgruppen mit je 128 Kanälen besteht, registriert. Mit dem Diskriminator, der das Koinzidenzsignal erzeugt, wird der im Analysator registrierte Bereich der Neutronenenergie nach oben begrenzt.

Zur Bestimmung der Impulshöhe wird jeder einlaufende Zählrohrimpuls in unteren Ast verstärkt und danach verzögert, damit er gleichzeitig mit dem Koinzidenzsignal am Vielkanalanalysator eintrifft. Der Baseline-Restorer ist aus folgenden Gründen erforderlich: Nach jeder Injektion von 14-MeV-Neutronen entsteht während der etwa 100 ns dauernden inelastischen Abbremsung ein intensives Feld von Gammas und hochenergetischen Neutronen. Die dadurch hervorgerufenen großen Zählrohrimpulse übersteuern das Verstärkersystem und würden ohne Baseline-Restorer zu einer Verschiebung der Nullinie am Eingang des Analysators und damit zu Fehlern in der Amplitudenmessung führen.

Die Zeitmessung im oberen Zweig geschieht mittels des Timeto-Amplitude-Converters (TAC), der für jedes Ionisationsereignis die Zeit mißt, die zwischen einem definiertem Anfangssignal (START) und dem Eintreffen des Zählrohrimpulses (STOP) vergeht. Der zentrale Zeitmarkengenerator löst einen 14-MeV-Neutronenimpuls von etwa l µs Dauer aus und startet gleichzeitig einen Pulsgenerator, der nach einer gewissen Verzögerungszeit t_{+s} (Zeit zwischen TARGET -und START-Signal) einen START-Impuls an den TAC weitergibt. Das Ausgangssignal des TAC ist proportional zur Zeit t_{ss} zwischen START-und STOP-Signal. Der Time-to-Amplitude-Converter ist je nach Wahl 4 oder 8 µs nach dem Startsignal empfangsbereit; trifft in dieser Zeit kein Stopsignal ein, so bewirkt ein interner Puls die Rückkehr in den Ausgangszustand. Die Startverzögerung t_{ts} bewirkt, daß nur Neutronen nachgewiesen werden, die sich länger als eine bestimmte (von t_{ts} abhängige) Zeit T_1 im Blei aufhielten und deren Energien unter $E(T_1)$ liegen. Durch die Wahl von t_{+s} wird ein bestimmtes Neutronenenergieintervall ausgeblendet. Abb.13 zeigt am Beispiel eines mit

1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 -

.

ABB.14 : Zeitlicher Zusammenhang zwischen Neutronennachweis und den im Experiment gemessenen Zeiten

•

Wasserstoff gefüllten Zählrohrs (mittlere Elektronendriftzeit t_n = 0.45µs), welche Energien bei vorgewählter Zeit t_{+c} registriert werden können. Bei einer Verzögerungszeit von 3µs und einer Öffnungszeit des TAC von 4µs sind das z.B. Neutronen, deren Energien zwischen 4 und 23 keV liegen. Zur Erzeugung eines unverzögerten, von der Amplitude weitgehend unabhängigen Stopsignals, wurde ein schneller Verstärker (HP 5583 A) und ein schneller Diskriminator (ORTEC 417) benutzt (Abb.12). Die der Zeit zwischen START und STOP proportionale Ausgangsamplitude des TAC entscheidet, in welche der 32 Zeitgruppen das gleichzeitig eintreffende Ionisationssignal eingeordnet wird. In einer Zeitgruppe wird demnach das Ionisationsspektrum derjenigen Ereignisse registriert, die in einem bestimmten Zeitintervall nach dem START-Impuls nachgewiesen wurden und entsprechend von Neutronen mit einer definierten mittleren Energie \overline{E} herrühren.

Anhand des Zeitschemas in Abb.14 läßt sich der Zusammenhang zwischen den experimentell bestimmten Zeiten t_{ss} und der Abbremszeit T der Neutronen im Bleipile verdeutlichen. Danach ist

$$T + t_{D} = t_{ts} + t_{ss}$$

$$T = t_{ts} + t_{ss} - t_{D}$$
(10)

 t_{ts} und t_D sind für eine Messung feste Parameter. t_{ts} wird so gewählt, daß der gewünschte Energiebereich im TAC registriert wird, und die mittlere Elektronendriftzeit t_D hängt vom Radius des benutzten Zählrohrs, dem Füllgas und der Betriebsspannung ab.

Die Unsicherheiten in der Zeitmessung bewirken eine Streuung der Abbremszeit T und daher eine Verbreiterung der Neutronenverteilung, die zu dem Ionisationsspektrum in einer bestimmten Zeitgruppe beiträgt. Folgende Effekte tragen zu der Zeitunsicherheit bei:

 Der 14-MeV-Neutronenpuls hat eine endliche Breite (etwa lµs)

- 2. Die Driftzeit im Zählrohr variiert zwischen Null und t_{max}.
- Die Breite einer Zeitgruppe beträgt bei 4µ Öffnungsdauer des TAC 0.125µs, bei 8µs 0.25µs.

Es wird angenommen, daß sich die Gesamtunsicherheit in der Zeitmessung AT durch quadratische Addition der Einzelbeiträge ergibt. Für das dünne (r = 1,15 cm), mit Wasserstoff gefüllte Zählrohr erhält man so eine Zeitunsicherheit von $\Delta T = \pm 0.65 \mu s$, d.h. die in einer Zeitgruppe gespeicherten Ionisationen rühren von Neutronen her, deren Abbremszeiten sich um 1,3µs unterscheiden können. Bei einer mittleren Neutronenenergie von 20 keV beträgt die Abbremszeit T 2,7µs. Die Subtraktion bzw. Addition von 0.65µs führt zu mittleren Energien von 31 bzw. 13.6 keV! Somit tragen zum Ionisationsspektrum der Zeitgruppe mit $T = 2,7\mu s$ Neutronen bei, die aus Verteilungen stammen, deren mittlere Energie zwischen 13,6 und 31 keV liegt. Die Grenzen rücken jedoch mit wachsender Abbremszeit T zusammen. Für $T = 13,3\mu s$ und E = 1 keV liegen die entsprechenden Energien bei 0,9 und 1,1 keV.

Um Verfälschungen der gemessenen Ionisationsspektren durch Überlagerung von Impulsen zu verhindern, wurde die Intensität des 14-MeV-Neutronenimpulses so klein gehalten, daß im Mittel nur bei jedem zehnten Zyklus ein Rückstoßproton auftrat. Die Wahrscheinlichkeit dafür, daß sich dann während eines Zyklus zwei Impulse überlagern ist so klein, daß eine merkliche Deformation des Ionisationsspektrums ausgeschlossen ist.

3.3. Meßablauf

Nach Festlegung des Neutronenenergieintervalls durch die Wahl von t_{ts}, werden vor und nach jeder Messung folgende Eichungen durchgeführt:

 Eichung der 128 Ionisationskanäle bezüglich der 764keV-Ionisation.

- 2. Bestimmung des Kanals, dem die Ionisation "Null" entspricht.
- 3. Eichung der 32 Zeitgruppen bezüglich t

<u>Zu 1.:</u> Mit thermischen Neutronen aus einer moderierten 5C-Am-Be-Quelle nimmt man zunächst die Lage des 764-keV-Peaks auf. Der gleich hoch eingestellte Impuls eines Pulsgenerators mit Präzisionsabschwächern dient im folgenden als Eichionisation. Bei einer Schwächung um den Faktor 30 zum Beispiel, entspricht er einer Ionisation von 25,46 keV. Soll dies die obere Grenze des zu untersuchenden Energieintervalls sein, so wird bei konstanter Zählrohrhochspannung die Verstärkung des Hauptverstärkers ORTEC 440 A so lange erhöht, bis dieser Impuls in Kanal 128 liegt. Damit ist die Ionisationsskala in einem Punkt geeicht. Um von hier aus linear nach unten unterteilen zu können, muß ein weiterer Punkt bekannt sein, z.B. der der Ionisation Null entsprechende Kanal.

Zu 2.: Dazu erzeugt man einen Impuls, der in einer hohen Kanalnummer gespeichert wird und schwächt ihn schrittweise um 10% ab. Aus den sich ergebenden Kanalnummern läßt sich der Nullpunkt extrapolieren. Gleichzeitig überprüft man damit die Linearität des Analysators.

<u>Zu 3.</u>: Die Eichung der 32 Zeitkanäle des Vielkanalanalysators erfolgt dadurch, daß man in den TAC START -und STOP-Impulse gibt, deren zeitlicher Abstand mit einem geeichten Oszillografen gemessen wird. Die Zeiteichung des Oszillografen wurde mit einem 100-kHz-Generator (Frequenzabweichung $< 10^{-5}$) überprüft; es ergab sich eine systematische Abweichung von 2%, die aber gegenüber den oben erwähnten Fehlern in der Zeitmessung zu vernachlässigen ist. Trägt man die abgelesenen Zeiten über den zugehörigen Gruppennummern auf, so erhält man eine Kennlinie, die jeder Zeitgruppe einen Wert für t_{es} zuordnet.

Nachdem die Einstellung der Verstärker feststand, wurden die Diskriminatoren am Vielkanalanalysator und der schnelle Diskriminator hinter dem HP-Verstärker so eingestellt, daß gerade keine Rauschimpulse registriert wurden. Um im Energiebereich unterhalb 5 keV messen zu können, mußten umfangreiche Abschirmmaßnahmen gegen die elektromagnetischen Felder getroffen werden, die von der Elektronik des Neutronengenerators ausgingen.

Meßzeiten zwischen zwei und drei Stunden waren erforderlich, um eine ausreichende Statistik zu erhalten. Abb.15 zeigt ein zweidimensionales Feld gemessener Ionisationsspektren, wobei das Ionisationsspektrum einer Zeitgruppe zur Hervorhebung heller getastet ist. Die durch die Zeitunsicherheit verursachte Streuung der Neutronenabbremszeit bedingt einen relativ langsamen Abfall des Spektrums bei der maximalen Ionisation. Für zunehmende Abbremszeit, d.h. abnehmende Neutronenenergie, verschiebt sich der Abfall zu kleineren Ionisationen hin. Dies sieht man gut im unteren Bild, das einen Schnitt durch die Spektren parallel zur Grundebene darstellt.

3.4. Auswertung

Die Auswertung erfolgte durch Differentiation des gemessenen

Ionisationsspektrums. Dem Abfall der Ionisationsverteilung bei der maximalen Ionisation entspricht ein Peak im differenzierten Spektrum, dessen Ionisationswert der Protonenenergie E(T) zugeordnet wird, wobei T die der jeweiligen Zeitgruppe entsprechende Abbremszeit ist. Die Differentiation geschieht mit einem Programm, das in bestimmten Intervallen

nach der Methode der kleinsten quadratischen Abweichung eine Gerade an die Meßpunkte anpaßt und deren Steigung bestimmt, die dann dem mittleren Kanal des Intervalls zugeordnet wird. Die Intervallsbildung verläuft fortschreitend so, daß man

Ionisation

Ionisation

b) Konturdarstellung

ABB.15 : Gemessene Ionisationsspektren in Abhängigkeit von der Abbremszeit T für jede Kanalnummer einen Ableitungswert erhält. Die Intervallbreite ist dabei ein fester Prozentsatz des mittleren Kanals im Intervall. Der Zahlenwert wird entsprechend der Auflösung der gemessenen Ionisationsverteilung gewählt. Bei einer Differentiationsbreite von 40% reicht z.B. das Intervall um Kanal 50 von Kanal 40 bis 60, das um Kanal 20 von 16 bis 24.

Es läßt sich zeigen $\sqrt{17}$, daß die Lage des so durch "numerische Differentiation" bestimmten Maximums

- a) identisch ist mit der, die man durch eine exakte mathematische Ableitung erhalten würde und
- b) unabhängig ist von der Differentiationsbreite (solange diese die Energieauflösung der gemessenen Spektren nicht erheblich überschreitet).

Abb.17 verdeutlicht die unter a) festgestellte Tatsache an Hand einer Testverteilung und Abb.18 das unter b) Gesagte an einer gemessenen Ionisationsverteilung, die mit zwei verschiedenen Intervallbreiten differenziert wurde. Bei allen Auswertungen wurde eine Intervallbreite von 40% benutzt und die Lage des so gefundenen Maximums mit der maximalen Ionisation identifiziert. Die zugehörige Protonenenergie ergibt sich für die betrachtete Zeitgruppe aus dem zugehörigen t_{ss} . Das so ermittelte Wertepaar liefert einen Meßpunkt für den Energie-Ionisations-Zusammenhang. Für jede Gasfüllung ließen sich aus zwei Messungen über den Energiebereich von 1-25 keV etwa 50 Meßpunkte bestimmen.

3.5. Meßergebnisse

Abb.19 zeigt den gemessenen Zusammenhang zwischen Protonenenergie und erzeugter Ionisation für Wasserstoff. Die doppelt logarithmische Darstellung hat den Vorteil, daß die sich zu kleinen Energien hin häufenden Meßpunkte optisch getrennt sind. Sie hat den Nachteil, daß sich die charakteristischen Eigenschaften des Zusammenhangs zwischen Protonenenergie E und Ionisation I nicht direkt daraus ablesen lassen. Oberhalb I = 5keV ist E proportional zu I, zwischen 2 und 5 keV ändert sich E schwächer mit I und unterhalb

ABB. 18 : Auswertung einer Ionisationsverteilung mit verschiedenen Differentiationsbreiten

- 29 -

- 30 -

I = 2 keV wieder stärker. Entsprechend hat die Ableitung w = dE/dI oberhalb von 5 keV den Wert 1, nimmt zwischen 5 und 2 keV ab und steigt bei kleineren Ionisationen erneut an. Die hier und in Abb.20,22 eingezeichneten Fehler ergeben sich einmal aus den Unsicherheiten in der Zeitmessung und zum anderen daraus, daß die Peaks in den differenzierten Spektren relativ breit sind (vgl. Abb.18), so daß sich die Kanalnummern bzw. Ionisationen nur mit einer Genauigkeit von etwa \pm 10% festlegen lassen.

Die eingezeichnete Ausgleichskurve wurde unter Vorgabe eines geeigneten Funktionstypes, der diese Änderung in der Steigung zeigt, nach der Methode der kleinsten guadratischen Abweichung bestimmt. Beim Vergleich des sich aus der Ableitung der Ausgleichskurve ergebenden w(E) mit früheren Messungen wird man berücksichtigen müssen, daß der genaue Verlauf der Absenkung von w zwischen 5 und 2 keV in gewissem Maße von dem willkürlich vorgewählten Funktionstyp abhängt. Dieser Freiheitsgrad in der Auswertung der Meßpunkte läßt sich nicht vermeiden, weil die theoretische Behandlung des Problems der Abbremsung schwerer geledener Teilchen in Materie noch nicht so fortgeschritten ist, daß man einen bestimmten Funktionstyp von dort her begründen könnte. Der Verlauf des sich hier ergebenden w(E) wird im nächsten Kapitel zusammen mit den in Tabelle 1 aufgeführten Arbeiten diskutiert.

Abb.20 zeigt den gemessenen Zusammenhang zwischen E und I für Methan. Hier bietet sich für die Ausgleichskurve ein spezieller Funktionstyp an. Wie schon in Abschnitt 2.2. erwähnt, gehört Methan zu den Gasen, bei denen sich der mittlere spezifische Energieverlust $W = E_0/I_{ges.}$ schon bei hohen Energien (einigen hundert keV) merklich ändert und durch die empirische Beziehung

$$W(E) = 1 + a/\sqrt{E} + b/E$$
 (11)

beschreiben läßt. Abb.21 zeigt die von ALLEN und FERGUSON $/\overline{2}$ im Bereich von 25 keV bis 1 MeV gemessenen Werte von W. Zusätzlich eingezeichnet sind die hier bestimmten Werte von W = E/I und die Kurve, die sich ergibt, wenn man die

Messreihe 1 Messreihe 2 Ausgleichskurve Protonenenergie [keV] .7 |keV] .8 .9 1 .6 8 9 10 Ionisation

ABB. 21 : Mittlerer spezifischer Energieverlust W von Protonen in Methan

- 32 -

Konstanten a und b aus Gleichung (11) so bestimmt, daß die Summe der quadratischen Abweichungen minimal wird. Die Übertragung dieser Funktion in die E-I-Ebene führt zu der in Abb.20 dargestellten Ausgleichskurve. Die Ableitung dieser Ausgleichskurve w = dE/dI wird ebenfalls im nächsten Kapitel beim Vergleich mit früheren Ergebnissen diskutiert. Die Beziehung zwischen Protonenenergie und erzeugter Ionisation wurde für drei Wasserstoff-Methan-Mischungen mit 1/6, 1/3 und 1/2 Anteil Methan untersucht. Abb.22 zeigt die erhaltenen Meßpunkte für die Mischung aus 50% Wasserstoff und 50% Methan, zusammen mit den hier bestimmten Ausgleichskurven für Wasserstoff (Abb.19) und Methan (Abb.20). Aus der geringen Breite des Streifens in der E-I-Ebene, der von diesen beiden Kurven eingeschlossen wird und aus der Streuung der eingezeichneten Meßpunkte ersieht man, daß die Unterschiede in den E-I-Beziehungen der einzelnen Gemische zu gering sind, um sie mit der hier benutzten Meßmethode nachweisen zu können. Allerdings liegen praktisch alle Meßpunkte für die drei Gasgemische zwischen den beiden Ausgleichskurven. Da der spezifische Energieverlust w von H2-CH₄-Gemischen von einigem praktischen Interesse ist und bisher keine weiteren Arbeiten darüber vorliegen, wird im nächsten Kapitel w(E) für Gemische aus den spezifischen Energieverlusten von Wasserstoff und Methan berechnet.

- 34 -

4. Vergleich mit bisherigen Messungen

In Veröffentlichungen, die den spezifischen Energieverlust behandeln, wird i.a. die Ionisation in relativen Einheiten als Funktion der Protonenenergie angegeben. Daraus ergeben sich durch Division relative Werte für den mittleren spezifischen Energieverlust W(E) = E/I, der sich in allen Zählgasen oberhalb von etwa 1 MeV nicht mehr meßbar ändert, so daß man ihn für hohe Energien auf 1 normieren kann. Aus W(E)wird mittels Gleichung (5) die hier interessierende, differentielle Größe w(E) berechnet, die dann bei hohen Energien ebenfalls den Wert 1 hat.

4.1. Wasserstoff

Die in Abschnitt 2.2. tabellarisch aufgeführten Messungen von w sind in Abb.23 zusammen mit den Ergebnissen dieser Arbeit aufgetragen.

Alle Messungen zeigen, daß sich der spezifische Energieverlust der Protonen von hohen Energien bis hinunter zu 10 keV nicht ändert. Für kleinere Energien gibt es Unterschiede zwischen den einzelnen Messungen, jedoch ergeben sie übereinstimmend eine Abnahme von w bis hinunter zu 3 keV. Das bedeutet, daß die Wahrscheinlichkeit für ionisierende Prozesse zwischen 3 und 10 keV zunehmend größer wird als die entsprechende Wahrscheinlichkeit im Bereich höherer Protonenenergien. Für noch kleinere Energien ist ein erneuter Anstieg von w zu erwarten, weil die Wirkungsquerschnitte für nicht ionisierende Wechselwirkungen stark zunehmen. Wenn sich schließlich die Protonenenergie dem Ionisationspotential von molekularem Wasserstoff (15,4 ev) nähert, muß w gegen Unendlich gehen. Sowohl die Messung von BENNETT $\overline{107}$ als auch die erhaltenen Ergebnisse lassen diese starke Zunahme von w im Bereich sehr kleiner Protonenenergien erkennen. Allerdings ist die quantitative Übereinstimmung der beiden Messungen in diesem Energiebereich nicht sehr gut.

1.1 Spez. Energieverlust w rel. Einh. 1.0 0.9 [7] + ALLEN et al 25-1000 keV B ROGERS [8] 8 - 1000 keV WERLE et al [9] 1.5 -20 keV 0.8 ۰ BENNETT [10] 1.5 - 10 keV 1.5-25 x diese Messung keŲ 0.7 10 100 1000 Í Protonenenergie [keV]

keV

keV

keV

ABB. 24 : Spezifischer Energieverlust von Protonen in Methan

4.2. Methan

Abb.24 zeigt die Ergebnisse für Methan. Bisher wurden nur zwei Messungen des spezifischen Energieverlustes von Protonen in Methan publiziert. Sowohl die Messung von ALLEN und FERGUSON im Bereich von 25-1000 keV als auch die von McCLURE $\langle \overline{11} \rangle$ (unterhalb 20 keV) ergaben ein zu kleinen Energien hin ansteigendes w(E). (Da die Messung von McCLURE sich nicht bis in den Bereich erstreckt, in dem w(E) als konstant gelten kann, wurde sie bei 20 keV an die Ergebnisse von ALLEN und FERGUSON angepaßt.) Das von McCLURE gemessene w(E) verläuft unterhalb von etwa 8 keV flacher als das aus dieser Messung bestimmte w(E).

4.3. Wasserstoff-Methan-Gemische

Bei der Neutronenspektroskopie im unteren Energiebereich benutzt man häufig Wasserstoffüllungen mit Methanzusätzen (etwa 5-20%), weil Methan die Betriebssicherheit bei hohen Gasverstärkungen erhöht. Methan absorbiert während der Teilchenbremsung entstehende Lichtquanten, die sonst in der Zählrohrwand Elektronen auslösen könnten. Dies würde zu unerwünschten Zählrohrimpulsen führen. Außer der hier im unteren Energiebereich durchgeführten Messung gibt es bisher keine weitere Messung von w(E) für H_2 -CH₄-Gemische. Daher wurde nach einem von HUBER et al. 207 entwickelten Modell, w für Mischungen aus den besser bekannten Werten für w_{H2} und w_{CH4} ermittelt. Die Ergebnisse dieser Rechnung stehen qualitativ in Übereinstimmung mit diesen Messungen an Gemischen. Im folgenden wird das Modell von HUBER et al. 207 erläutert:

Ein mit der Energie E_0 einfallendes Teilchen gibt seine Energie im Gemisch ab und zwar E_1 an Gas 1 und E_2 an Gas 2. E_1/E_2 hängt ab vom Verhältnis der Partialdrucke P_1/P_2 und dem Verhältnis der Bremsvermögen S_1/S_2 und zwar gemäß:

 $\frac{E_1}{E_2} = \frac{P_1}{P_2} \frac{S_1}{S_2}$ (12)

(Unter dem Bremsvermögen versteht man den auf ein Molekül pro cm³ bezogenen Energieverlust pro cm Weg, dE/dx.)

Mit
$$E_1 + E_2 = E_0$$
 folgt
 $E_1 = \frac{S_1P_1}{S_1P_1 + S_2P_2} \cdot E_0$ und $E_2 = (1-Z)E_0$
wobei Z $= \frac{S_1P_1}{S_1P_1 + S_2P_2}$ ist.

Wenn die Ionisierungen in beiden Gasen unabhängig voneinander verlaufen, ergibt sich für die Zahl der in beiden Gasen gebildeten Ionen:

$$N_1 = \frac{E_1}{W_1} \qquad \qquad N_2 = \frac{E_2}{W_2}$$

Der mittlere Energieverlust pro Ionisation in der Gasmischung ist

$$W_{M} = \frac{E_{O}}{N_{1} + N_{2}} = \frac{E_{O}}{\frac{E_{1}}{W_{1}} + \frac{E_{2}}{W_{2}}} = \frac{E_{O}}{\frac{E_{O}}{2E_{O}/W_{1} + (1-2)E_{O}/W_{2}}}$$

Dann ist

$$\frac{1}{W_{M}} = \frac{Z}{W_{1}} + \frac{1-Z}{W_{2}}$$

$$\frac{1}{W_{M}} = \left(\frac{1}{W_{1}} - \frac{1}{W_{2}}\right) Z + \frac{1}{W_{2}}$$
(13)

oder

BORTNER und HURST $/\overline{21}$ haben die Gültigkeit dieser Beziehung für zahlreiche Gaskombinationen mit 5-MeV-Alphateilchen untersucht. Sie fanden, daß mit (13) alle von ihnen durchgeführten Messungen richtig wiedergegeben werden, sofern man für S_2/S_1 einen durch Anpassung an die Meßwerte empirisch bestimmten Wert einsetzt. Für die verschiedenen Gaskombinationen weicht dieser Wert verschieden stark von dem direkt bestimmten Verhältnis S_2/S_1 für 5-MeV-Alphateilchen ab, jedoch besteht bei Wasserstoff-Methan-Gemischen eine gute Übereinstimmung. Zur Berechnung des mittleren spezifischen Energieverlustes von Protonen in Gemischen, $W_M(E)$, wurden die sich aus den Messungen ergebenden energieabhängigen Größen $W_{H2}(E)$ und $W_{CH4}(E)$ benutzt. Weiterhin wurde berücksichtigt, daß das Verhältnis S_{CH4}/S_{H2} mit der Energie variiert. Es hat im MeV-Bereich für Protonen sowie für Alphateilchen etwa den Wert 4 und nimmt bei 1 keV etwa den Wert 2,9 an.

Dies hat zur Folge, daß der Partialdruck des Methans (je nach Protonenenergie) 3-4 mal so stark eingeht wie der des Wasserstoffs. Kleine Zusätze von Methan bewirken somit eine relativ starke Änderung des für reinen Wasserstoff geltenden spezifischen Energieverlustes. Für jedes feste Gemisch mit den Teildrucken P₁ und P₂ ergibt sich ein W_M(E); aus diesem wird nach (5) die differentielle Größe w_M(E) berechnet. In Abb.26(A) wurden für die Rechnung die hier erhaltenen Ergebnisse benutzt; in Abb.26(B) die Werte anderer Autoren.

Man sieht, daß z.B. bereits ein Methangehalt von 5% eine Anhebung von $w_{H2}(E)$ über einen großen Energiebereich bewirkt. Bei 2 bis 3 keV Protonenenergie beträgt sie etwa 6 bzw. 5 % (26(A) bzw. 26(B)). Unabhängig von dem genauen Verlauf von $w_{H2}(E)$ in 26(A) und 26(B) zeigt sich übereinstimmend, daß die üblichen Zusätze von 5 bis 15% Methan zu Wasserstoffüllungen eine merkliche Änderung des spezi- 40 -

;

fischen Energieverlusts von Protonen in Wasserstoff bewirken. In welchem Maße sich dies auf die Bestimmung von Neutronenspektren mit der Protonen-Rückstoß-Methode auswirkt, wird im folgenden Kapitel untersucht.

5. Einfluß der Energieabhängigkeit von w auf die Berechnung des Neutronenflusses

Bei der Protonen-Rückstoß-Methode wird aus einer gemessenen Ionisationsverteilung N(I) mit Hilfe des spezifischen Energieverlusts w(I) der gesuchte Neutronenfluß φ (E) berechnet. In allen Zählgasen kann w für Protonenenergien oberhalb von einigen hundert keV als konstant angesehen werden, dagegen zeigen sich zu kleinen Energien hin Abweichungen von diesem konstanten Wert. (Bei der hier vorgenommenen Eichung der Ionisation in "keV"-Einheiten gilt für große Energien E=I, d.h. w=dE/dI=1.) In diesem Kapitel soll untersucht werden, welchen Einfluß diese Abweichungen vom Wert 1 auf den be rechneten Neutronenfluß haben. Dazu wird folgendes Verhältnis betrachtet:

Es gibt den Fehler an, den man macht, wenn man anstelle des energieabhängigen w(E) ein konstantes w = 1 für die Flußberechnung benutzt.

Der Fluß berechnet sich nach Gleichung (3):

$$\varphi(E) = -\frac{1}{NT} \cdot \frac{E}{\sigma(E)} \cdot \frac{d}{dE} N(I) / w(I) \qquad (14)$$

$$= -\frac{1}{NT} \cdot \frac{E}{\sigma(E)} \cdot \frac{dN}{dI} \left(1 - \frac{N(I)}{dN/dI} \cdot \frac{dw}{dE}\right) \frac{1}{w^2} \qquad (15)$$

)

Für w = 1 ergibt sich φ_0 zu:

$$\varphi_{o}(E) = -\frac{1}{NT} \cdot \frac{E}{\sigma(E)} \cdot \frac{dN}{dI}$$

Somit gilt für den Fehler ø / ø:

$$\frac{\varphi_{o}}{\varphi} (E) = \frac{w^{2}}{1 - \frac{N}{dN/dI} \cdot \frac{dw}{dE}}$$
(16)

In ihn geht das Quadrat von w ein, die Ableitung dw/dE und der Quotient N/(dN/dI), der vom jeweils gemessenen Ionisationsspektrum N(I) abhängt. Das bedeutet, daß der Wert von φ_0/φ bei einer festen Energie spektrumsabhängig ist. Daher wurde φ_0/φ für zwei analytisch darstellbare Neutronenflußverteilungen bestimmt. Einmal für ein 1/E-Spektrum (\emptyset_1) und zum anderen, - weil eine wichtige Anwendung der Protonen-Rückstoß-Methode die Messung von Spektren in schnellen Reaktoren ist -, für ein hartes "Reaktor"-Spektrum \emptyset_2 . Abb.27 zeigt als Beispiel die Spektren von zwei schnellen Reaktoren und die beiden hier betrachteten Neutronenflußverteilungen \emptyset_1 und \emptyset_2 . Die Berechnung von φ_0/φ geht über (2), aus der sich die für ein vorgegebenes Neutronenspektrum φ (E) einstellende Ionisationsverteilung N(I) ergibt:

$$N(I) = w(I) \cdot NT\sigma(E) \int_{E} \frac{1}{E_{n}} \cdot \mathscr{O}(E_{n}) dE_{n}$$
(17)
E

Aus dem Quotienten N/(dN/dI) und dem gemessenen Verlauf von w(E) erhält man nach (16) φ_{o}/φ als Funktion der Energie.

Abb.28 zeigt die Größe φ_0/φ für \emptyset_1 (1/E-Spektrum). Dazu wurden die spezifischen Energieverluste benutzt, die in Abb.26A (eigene Messung) und 26B (andere Autoren) dargestellt sind. Allgemein läßt sich feststellen, daß der Fehler φ_0/φ sehr stark vom Verlauf von w(E) bestimmt wird. Aus Abb. 28 A ergibt sich für reinen Wasserstoff (unter der Voraussetzung, daß das gemessene w_{H2}(E) die richtige Energieabhängigkeit hat), daß bei Messung eines 1/E-Spektrums und Auswertung mit w = 1 bei 2,5 keV nur 10% des tatsächlich vorhandenen Flusses gemessen würden. Dagegen ergäbe sich bei 1,5 keV ein Fluß, der um mehr als 100% zu hoch liegt.

Auch mit dem von BENNETT $\langle \overline{10} \rangle$ gemessenen w_{H2}(E) führt die Vernachlässigung der Energieabhängigkeit von w im Energiebereich unter 10 keV zu großen Fehlern (Abb.28 B) in der Neutronenflußbestimmung.

Bei Methan ergäbe die Auswertung mit w = 1 zu hohe Neutronenflüsse. Bei 100 keV beträgt der Fehler 5%, bei 10 keV schon 20%. Diese Abweichungen nach oben machen sich auch in allen Gemischen mit Methan bemerkbar, z.B. kann der Methangehalt von 5% einen Fehler in der Flußbestimmung von 10% (bei 5 keV in Abb.28A) verursachen.

Abb.29 zeigt die Berechnungen für das harte Spektrum \emptyset_2 . Die sich ergebenden Fehler sind hier noch ausgeprägter als beim 1/E-Spektrum.

Bei Wasserstoff bewirkt der hier gemessene Verlauf von w_{H2} mit seinem scharfen Abfall bei etwa 2 keV (Abb.26A), daß φ_0/φ negative Werte annimmt (Abb.29A), d.h., daß in schnellen Spektren gemessene Ionisationsverteilungen eine positive Steigung aufweisen können. (Dies ist nicht möglich, wenn w = 1 ist, weil dann monoenergetische Neutronen eine rechteckige Ionisationsverteilung hervorrufen und daher jede beliebige Neutronenverteilung eine monoton fallende Ionisationsverteilung bewirkt.) Legt man für die Berechnung von φ_0/φ das von BENNETT /107 gemessene, sich nur um 12% verringernde, w_{H2}(E) zu Grunde (Abb.29B), so ergibt sich bei der Auswertung mit w = 1 ein Fluß, der bis zu 45% zu klein (bei 4 keV) und unterhalb 2 keV zu groß ist.

Die großen, in Abb.28 und 29 dargestellten Fehler, verdeutlichen, daß der spezifische Energieverlust w genau bekannt sein muß, damit man Neutronenflüsse mit der angestrebten Genauigkeit von 10% messen kann. Wie man an Hand von (15) sieht, geht in die Berechnung von $\varphi(E)$ aus einer gemessenen Ionisationsverteilung nicht nur w selbst ein, sondern auch seine Ableitung dw/dE. Der zweite Faktor in der Klammer von (15), der dw/dE enthält, ist nicht klein gegenüber 1. Wäre dies so, dann könnte man in (16) den Ausdruck (N/dN/dI)·dw/dE gegenüber 1 vernachlässigen und φ_{0}/φ wäre einfach w(E)². Da φ_{0}/φ aber wesentlich stärker variiert als

A: Berechnung mit w und w aus dieser Messung B: Berechnung mit w und w aus Messungen anderer Autoren H2 CH4

- 45 -

A: Berechnung mit w und w aus dieser Messung H2 CH4 B: Berechnung mit w und w von anderen Autoren H2 CH4

- 46 -

 $w(E)^2$, ja sogar negativ wird (Abb.29A), hat die Ableitung dw/dE einen erheblichen Einfluß auf die Berechnung des Neutronenflusses $\varphi(E)$. Da man zur Bestimmung des spezifischen Energieverlustes w den Zusammenhang zwischen Protonenenergie und erzeugter Ionisation aufnimmt und w hieraus durch Differentiation gewinnt, bedeutet dies, daß in die Flußberechnung die zweite Ableitung einer (durch die Meßpunkte gelegten) Ausgleichskurve eingeht.

Die Unterschiede zwischen den in Abb.29A und 29B dargestellten Größen φ_0/φ zeigen, daß der Verlauf von w(E) bei Wasserstoff und Methan unter 10 keV zur Zeit nicht so genau bekannt ist, daß man Neutronenflüsse in diesem Energiebereich mit guter Genauigkeit messen könnte. (Obwohl man zur Messung unter 10 keV keine Methanfüllungen verwendet, ist die Energieabhängigkeit von w_{CH4} (E) insofern von Bedeutung, als sie sich bei H₂-CH₄-Gemischen bemerkbar macht. Diese Mischungen finden ihre Anwendung gerade im unteren Energiebereich, wo man mit hohen Gasverstärkungen arbeiten muß.)

Oberhalb von 10 keV sind w_{H2} und w_{CH4} relativ gut bekannt. Alle bisherigen Messungen in Wasserstoff zeigen, daß die erzeugte Tonisation proportional zur Protonenenergie ist (d.h. w=1). Bei Methan besteht eine gute Übereinstimmung dieser Messung mit den Ergebnissen von ALLEN und FERGUSON $\angle \overline{27}$, so daß der in Abb.26A gezeigte Verlauf von w_{CH4} als verläßlich gelten kann. Dies gilt ebenso für die aus w_{H2} und w_{CH4} berechneten spezifischen Energieverluste in Gemischen.

Da die Vernachlässigung der Energieabhängigkeit von w auch oberhalb von 10 keV noch zu beträchtlichen Fehlern in der Flußberechnung führt (vgl. Abb.29A), ist es für die Ge – nauigkeit von Messungen oberhalb 10 keV von Vorteil, die Energieabhängigkeit der spezifischen Energieverluste von Methan und Wasserstoff-Methan-Gemischen zu berücksichtigen. Bei der Bestimmung des Neutronenspektrums φ (E) aus einer gemessenen Ionisationsverteilung N(I) wird w als Funktion von I benötigt (14). Der Übergang von (dem in Abb.26A gezeigten) w(E) zu w(I) geschieht derart, daß man den Wert, den w für eine feste Energie E_0 hat, der zugehörigen Ionisation I_0 zuordnet, wobei der Zusammenhang zwischen E und I durch den bekannten mittleren Energieverlust W = E/Igegeben ist. Abb.30 zeigt w in Abhängigkeit von der Ionisation. Der sich oberhalb von 10 keV ergebende langsame Abfall läßt sich offenbar gut durch w(u) = 1+ae^{-b·u}, mit u = ln I annähern. Als Funktion von I wird dann

 $w(I) = 1 + a \cdot I^{-b},$ (18)

wobei die Konstanten a und b von der Zusammensetzung des Gemisches abhängen. In Abb.31 sind a und b als Funktion des Methangehalts dargestellt, so daß man für jedes feste Gemisch den zutreffenden spezifischen Energieverlust w(I) entnehmen kann.

Das gesuchte Neutronenspektrum ergibt sich aus der gemessenen Ionisationsverteilung N(I) unter Berücksichtigung von w(I) auf folgende Weise: Definitionsgemäß ist

$$P = \frac{N(I)}{w(I)}$$

wobei P die Anzahl der Protonen pro Energieintervall und N die Anzahl der Ionisationen pro Ionisationsintervall bedeuten. Die zu I gehörigen Energiewerte ergeben sich aus der integrierten Beziehung (18) gemäß

$$E = I + \frac{a}{1-b} \cdot I^{1-b}$$

und damit ist P als Funktion von E bestimmt. Das Neutronenspektrum ergibt sich daraus entsprechend (3)

$$\varphi(E) = \frac{1}{NT} \cdot \frac{E}{\sigma(E)} \cdot \frac{d}{dE} P(E)$$

1.3 rel. Einh. Methan 1.2 Spezifischer Energieverlust w 20% CH 1.1 10 5 1.0 .9 ABB. 30: Spezifischer Energieverlust w .8 asserstoff als Funktion der Ionisation für Wasserstoff-Methan-Gemische .7 L_____.5 10 100 1000 1 [k eV] Ionisation .6 b .5 .4 $w(I) = 1 + \alpha \cdot I^{-b}$ (für I > 10 keV) .3 .2 .1

<u>ABB.31</u>: Konstanten a und b der Näherungsfunktion $w = 1 + a \cdot I^{-b}$ in Abhängigkeit vom Methangehalt des Zählgases.

10

Methangehalt

3

5

50

30

100 %

0

1

- 49 -

6. Zusammenfassung

In den letzten Jahren hat sich die Messung von Neutronenspektren mit Hilfe von Protonenrückstoß-Proportionalzählrohren zu einer zuverlässigen und gebräuchlichen Methode entwickelt. Die untere Grenze des meßbaren Energiebereiches von etwa 30 keV, bedingt durch die Gammaempfindlichkeit der Zählrohre, konnte durch die Entwicklung eines Diskriminationsverfahrens $\overline{17}$ bis auf etwa 1 keV gesenkt werden. Voraussetzung für die Nutzung dieses meßtechnisch neu erschlossenen Energiebereichs ist die Kenntnis des spezifischen Energieverlustes w (Energieverlust pro erzeugtem Ionenpaar) von Protonen im benutzten Zählgas, weil das gesuchte Neutronenspektrum $\varphi(E)$ über w aus dem gemessenen Ionisationsspektrum N(I) berechnet wird. Als Zählgase werden Wasserstoff, Methan und Mischungen aus diesen beiden Gasen verwendet. Für Messungen im Energiebereich unterhalb von 100 keV benutzt man Wasserstoff, weil die in Methan auftretenden Kohlenstoff-Rückstoßkerne das Protonenspektrum verfälschen können. Allerdings wird dem Wasserstoff häufig etwas Methan (bis zu 20%) zugesetzt, um den Gasverstärkungsprozess zu stabilisieren. Da bisher im Energiebereich unter 30 keV nur wenig über w bekannt ist, wurde in dieser Arbeit der spezifische Energieverlust von Protonen in Wasserstoff, Methan und H2-CH4-Gemischen untersucht. Dazu wurde für die verschiedenen Zählgase der Zusammenhang zwischen Protonenenergie E und erzeugter Ionisation I gemessen und daraus w = dE/dI durch Differentiation gewonnen. Für Wasserstoff ergab die Messung, daß w_{H2} oberhalb von 10 keV konstant ist, d.h. bei der hier vorgenommenen Eichung der Ionisation in keV-Einheiten oberhalb von 10 keV den Wert 1 hat. Dies zeigten auch alle bisherigen Messungen. Unterhalb von 10 keV nimmt w_{H2} zunächst ab (um 23%), um dann wieder anzusteigen.

Bei Methan ergab sich ein, zu kleinen Energien hin, ständig zunehmender spezifischer Energieverlust. Die hier erhaltenen Werte für w_{CH4} schließen sich sehr gut an die Ergebnisse von ALLEN $\overline{\sqrt{27}}$ an, der den Verlauf von w_{CH4} im Energiebereich oberhalb von 25 keV gemessen hat.

Bei den drei untersuchten H_2 -CH₄-Gemischen mit 1/6, 1/3 bzw. 1/2 Volumenanteil Methan zeigte sich, daß das Auflösevermögen des Experiments nicht ausreichte, die energieabhängigen spezifischen Energieverluste der drei Gemische voneinander zu trennen. Da bisher keine Messungen von w in H_2 -CH₄-Mischungen unternommen wurden, diese aber von einigem praktischen Interesse sind, wurden sie hier aus den Werten von w_{H2} und w_{CH4} berechnet.

Der Vergleich aller bisherigen Veröffentlichungen zeigt, daß man hinsichtlich der Genauigkeit,mit der w bekannt ist, zwei Energiebereiche – und zwar den Bereich unterhalb und oberhalb von 10 keV – unterscheiden muß. Unterhalb von 10 keV weichen die Ergebnisse der verschiedenen Autoren um bis zu 15% voneinander ab. Bei der Berechnung des Neutronenspektrums aus der gemessenen Ionisationsverteilung geht die Ableitung dw/dE und w² ein. Dies hat zur Folge, daß sich bei der Auswertung einer Ionisationsverteilung sehr unterschiedliche Werte für den Neutronenfluß ergeben, je nachdem welcher der bisher gemessenen w(E)-Verläufe zur Berechnung herangezogen wird. Bei Wasserstoff kann dies zu einer Veränderung des Flusses um bis zu 70% führen und bei Methan um bis zu 40%.

Die angestrebte Genauigkeit in $\varphi(E)$ von 10% ist somit auf Grund der unzureichenden Kenntnis des spezifischen Energieverlustes unterhalb von 10 keV nicht gewährleistet. Um diese zu erreichen, muß man bei der Bestimmung von w sehr hohe Anforderungen an die Meßgenauigkeit stellen. Mißt man nämlich wie hier die Ionisation als Funktion der Protonenenergie, dann geht mit dw/dE die zweite Ableitung einer durch die Meßpunkte gelegten Ausgleichskurve in die Flußberechnung ein.

Für Energien, größer als 10 keV, kann man auf Grund der Übereinstimmung dieser Messung mit den bisherigen Publikationen annehmen, daß der spezifische Energieverlust von Protonen in Methan bis auf einen Fehler von maximal 2% bekannt ist. Die Abweichungen von w_{H2} vom Wert 1 sind sicher kleiner als 1%, so daß auch die aus $w_{H2}^{}$ und $w_{CH4}^{}$ berechneten spezifischen Energieverluste für H_2 -CH₄-Mischungen (w_M) oberhalb von 10 keV als verläßlich gelten können. Für diesen Energiebereich wurde eine analytische Darstellung von w_M gegeben, weil die Auswertung mit $w \equiv 1$ zu merklichen Fehlern in der Neutronenflußbestimmung führt. (Bei 10 keV für Methan 20%; für ein Gemisch von 5% Methan + 95% Wasserstoff 6%.) Die in der analytischen Darstellung von w_{M} auftretenden Konstanten sind als Funktion des Methangehalts dargestellt, so daß man das energieabhängige w_M für jedes Gemisch berechnen kann.

Literaturverzeichnis

- [1] Bennett, E.F.: Gamma-Ray Discrimination in Proton-Recoil Proportional Counters. Proc. Symp. Neutron Detection Dosimetry and Standardization, Harwell, Dec. 10-14, 1962 (IAEA, Vienna, 1963) Vol. II, S. 341 - 349
- 27 Werle, H.: Spektrumsmessungen radioaktiver Neutronenquellen im Energiebereich von 10 keV bis 10 MeV mit Protonenrückstoß-Proportionalzählrohren. KFK Ext. Bericht INR-4/70-25, Report ORNL-tr-2415 (1970)
- <u>Kuyatt, C.E. and Jorgenson, T.: Energy and Angular</u> Dependence of the Differential Cross Section for Production of Electrons by 50-100 keV Protons in Hydrogen Gas. Phys. Rev. 130 (1963) 1444
- 2 47 Phelps, A.V.: Rotational and Vibrational Excitation of Molecules by Low-Energy Electrons. Rev. Mod. Phys. 40 (1968) 399
- <u>/</u> <u>5</u>/ Leake, J.W.: The Measurement of w, the Average Energy to Produce An Ion Pair, for Recoil Nuclei in Carbon Dioxide. Report AERE-R-5130 (1967)
- /_6/ Isaev, B.M. et al.: Ion-Formation Energy of Charged Particles in Gases. Izmeritel'naya Tekhnika 4 (1967) 3
- <u>7</u> Allen, W.D. and Ferguson, A.T.G.: The Measurement of Fast Neutron Flux over the Neutron Energy Range. .03 MeV to 3.0 MeV. Proc. Phys. Soc. 70 A (1957) 639
- <u>87</u> Rogers, J.W.: An Investigation of the Energy Dependence of the Specific Average Energy Loss Per Ion Pair in Methan and Hydrogen with a Proton-Recoil Spectrometer. Trans. Am. Nucl. Soc. <u>12</u> (Dec. 1969) 936
- <u>2</u> Werle, H. et al.: Investigation of the Specific Energy Loss of Protons in Hydrogen above 1 keV with Regard

to Neutron Spectrometry. Nucl. Inst. Meth. 72 (1969) 111

- /107 Bennett, E.F.: Low-Energy Limitations on Proton-Recoil Spectroscopy through the Energy Dependence of w. Trans. Am. Nucl. Soc. 13 (Juni 1970) 269
- /Ī1/ McClure, G.W. and Allenworth, D.L.: Proportional Counter for Detection of Ions and Atoms in Kiloelectronvolt Energy Range. Rev. of Scient. Inst. 37 (1966) 1511
- /127 Seufert, H. and Stegemann, D.: Energy -and Temperature-Dependent Capture Measurements below 30 keV supporting Doppler Effect Calculations. Fast Reactor Phys. Vol (IAEA, Vienna, 1968) 77
- $\langle \bar{1}3\bar{2}\rangle$ Chou, J.C.: Messung von (n,γ) -Wirkungsquerschnitten für Te⁹⁹, En, Sm und Fe im Energiebereich 1 eV bis 50 keV mit einem Bremszeitspektrometer. KFK Ext. Bericht INR-4/70-28 (1970)
- /14/ Bergmann, A.A. et al.: A Neutron Spectrometer Based on Measuring the Slowing-Down Time of Neutrons in Lead. Intern. Conf. "Peaceful Uses At. Energy" (Proc. Conf. Geneva, 1955) <u>4</u> (UN, New York, 1956) 135
- <u>VI57</u> Wagner, E.B. et al.: Time of Flight Investigations of Electron Transport in Some Atomic and Molecular Gases. Jour. Chem. Phys. 47 (1967) 3138
- /167 Lowke, J.J.: Driftvelocity of Electrons in Hydrogen and Nitrogen. Austr. Jour. Phys. 15 (1962) 39
- <u>/17</u> Bortner, T.E. et al.: Drift Velocities of Electrons in Some Commonly Used Counting Gases. Rev. of Scient. Inst. <u>28</u> (1957) 103
- /18/ Lalovic, M. and Werle, H.: The Energy Distribution of Antimony-Beryllium Photoneutrons. J. Nucl. Energy 24 (1970) 123

- $\langle \overline{197} \rangle$ Bennett, E.F.: Study of the 1/E Slowing-Down Neutron Spectrum Using 4π-Recoil Proportional Counters. Report ANL-6897 (1964)
- /20/ Huber et al.: Arbeit pro Ionenpaar von Gasen und Gasmischungen für Alphateilchen. Helv. Phys. Acta 23 (1949) Suppl. III S. 170
- $\sqrt{217}$ Bortner, T.E. and Hurst, G.S.: Ionisation of Pure Gases and Mixtures of Gases by 5-MeV Alpha Particles. Phys. Rev. 93 (1954) 1236
- $\langle \overline{227} \rangle$ Parker, J.B. et al.: The Interpretation of Recoil Spectra. Nucl. Inst. Meth. 23 (1963) 61