

Im Vergleich dazu ergeben die mit den Ansätzen (4,13) berechneten Näherungsintegrale

$$\int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{\partial p}{\partial b} \ln p \, d\varphi \, d\psi \approx 4\pi^4 b,$$

$$\int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \ln p \, d\varphi \, d\psi \approx -4\pi^2 (2 \ln 2\pi + 2\pi^4 b^2).$$

Dies sind — wie nicht anders zu erwarten — die ersten Glieder der Reihenentwicklungen von (11,1); sie stellen wegen der guten Konvergenz bei nicht zu großem b eine brauchbare Näherung dar.

Für die Anregung und Fertigstellung dieser Arbeit sowie manche Hinweise ist der Verfasser Herrn Professor Dr. G. SCHUBERT zu besonderem Dank verpflichtet. Für weitere Fragestellungen und wertvolle Diskussionen dankt er Herrn Professor Dr. H. A. STUART. Die Durchführung der Arbeit wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft in dankenswerter Weise unterstützt.

²³ siehe etwa JAHNKE-EMDE, Tafeln höherer Funktionen, Leipzig 1948.

Die größtmögliche Ausbeute einer Ra+Be-Neutronenquelle

Von F. BERTHOLD und P. JENSEN *

Aus dem Max-Planck-Institut für Chemie, Mainz

(Z. Naturforschg. 13 a, 143—147 [1958]; eingegangen am 5. Dezember 1957)

Es wurden Rn+Be-Neutronenquellen hergestellt, bei denen ausgefrorenes Radon einer Berylliumscheibe unter genau definiertem Raumwinkel gegenüberstand. Kontrollmessungen zeigten u. a., daß die α -Teilchen nicht im Präparat vorgebremst wurden und daß kaum Rückstoßkerne die Ausfrierstelle verließen. Nach Umrechnung von Rn+Be- auf Ra+Be-Quellen ergab sich die größtmögliche Ausbeute einer Ra+Be-Quelle zu 16 800 Neutronen (ohne Photoneutronen) pro sec und mC Ra mit Folgeprodukten außer Polonium¹.

Im Anhang wird gezeigt, daß als Hauptursache für die Verschiedenheit der Neutronenspektren von Ra+Be-Quellen die unterschiedliche Photoneutronenausbeute anzusehen ist.

Die Neutronenausbeute einer Ra+Be-Quelle ist deshalb nie optimal, weil die α -Teilchen schon in der Radiumverbindung vorgebremst werden.

Nun wäre es interessant zu wissen — etwa zur Beurteilung der Güte von Neutronenquellen —, wo die obere Grenze der pro mC Ra erreichbaren Neutronenausbeute liegt.

Deshalb wurde eine Rn+Be-Quelle hergestellt, in der die α -Teilchen wegen der hohen spezifischen Aktivität des Radons praktisch nicht vorgebremst werden. Damit wird es möglich, daß die Ausbeute einer Rn+Be-Quelle ihren theoretischen Höchstwert erreicht. Durch eine Reihe von Kontrollmessungen wurde geprüft, ob die Bedingungen zur Erreichung dieses Höchstwertes tatsächlich gegeben sind. Um von der Rn+Be- auf die Ra+Be-Quelle schließen zu können, muß man noch eine Korrektur anbringen für die Neutronen, die von den α -Teilchen des Radiums (ohne Folgeprodukte) erzeugt werden.

I. Die Rn+Be-Neutronenquelle (Abb. 1)

Ein Glasrohr von etwa 14 mm Innendurchmesser, das mit flüssiger Luft gefüllt werden kann, ist auf

* verstorben am 17. 8. 1955.

einen größeren Glaszylinder mit etwa 27 mm ϕ aufgeschmolzen. Der letztere kann über einen (in Abb. 1 nicht gezeigten) Schliff (29 mm ϕ) mit einer Emanationsanlage in Verbindung gebracht werden. Die im Ca-Ofen gut gereinigte Emanation wird an der durch die flüssige Luft gekühlten Stelle ausgefroren.

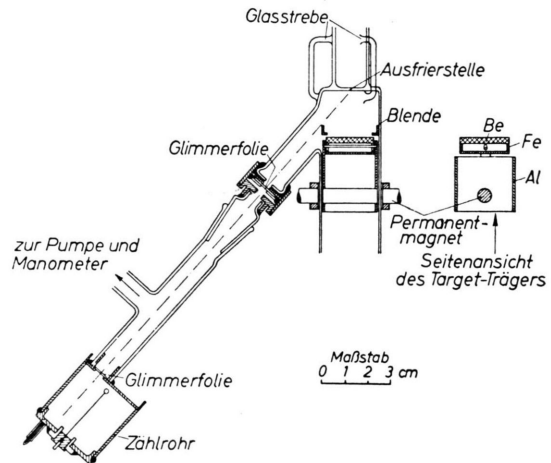


Abb. 1. Die Rn+Be-Neutronenquelle mit Zählrohr zur Messung der α -Reichweiten.

¹ Vorläufige Mitteilung in Phys. Verh. 5, 3 [1954]. Wesentliche Teile der vorliegenden Arbeit wurden als Diplomarbeit Freiburg 1955 ausgeführt.



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

Der Ausfrierstelle gegenüber steht eine Berylliumplatte**. Sie ist in einem Gestell aus Aluminium gelagert, das einen Permanentmagnet trägt und von außen durch 2 Haltemagnete im Glasrohr auf- und abbewegt werden kann. Diese Bewegbarkeit ist erforderlich, damit die Be-Scheibe von der den Raumwinkel definierenden Messingblende nach unten weggezogen werden kann. An Stelle der Berylliumscheibe kann eine Eisenscheibe nach oben gedreht werden, und zwar ebenfalls magnetisch von außen.

Die Be-Scheibe steht nicht direkt vor der Ausfrierstelle, da dann der Raumwinkel wegen unvermeidlicher Unebenheiten im Glas nicht genau zu bestimmen wäre. Außerdem soll vermieden werden, daß sehr flach austretende α -Strahlen zur Neutronenerzeugung beitragen.

Seitlich am Glaszylinder ist ein Glasstutzen angeschmolzen, an den durch einen Schliff ein weiteres Glasrohr und ein Zählrohr angeschlossen werden können. Durch ein $5\ \mu$ -Glimmerfenster treten die α -Teilchen in eine Luftabsorberstrecke (mit veränderbarem Luftdruck) ein und gelangen durch ein weiteres $5\ \mu$ -Glimmerfenster in ein Proportionalzählrohr (Füllung: 60 Torr Methylal).

II. Bestrahlungsanordnung und Neutronennachweis

Die Rn + Be-Quelle wurde in einen zylindrischen Hohlraum (Höhe 16 cm, Durchmesser 12 cm) in einem Paraffinmoderator gestellt und die Aktivierung von Dysprosiumsonden durch thermische Neutronen im Hohlraum gemessen. Unten ist der Hohlraum teilweise durch Wasser begrenzt, das sich hinsichtlich Neutronenbremsung sehr ähnlich wie Paraffin verhält. Die Wandstärke des Moderators ist überall mindestens 10 cm; durch eine größere Dicke würde die Neutronendichte im Hohlraum nicht mehr erhöht.

Die Neutronenquelle, also die Be-Scheibe, befindet sich genau in der Mitte des Hohlraumes; zwei Dy-Sonden (etwa 1 g Dy_2O_3 auf Al-Unterlage mit $10\ \mu$ -Glimmer bedeckt, SONDENDURCHMESSER 2,5 cm) liegen symmetrisch dazu. Diese Anordnung wurde aus folgendem Grunde gewählt: die Neutronenquelle ist stark anisotrop, da die Impulse der nach α -Einfang gebildeten ^{13}C -Zwischenkerne nach unten gerichtet sind, und bei im Schwerpunktsystem isotro-

pem Zerfall im Laborsystem mehr Neutronen nach unten emittiert werden. Bei einer mittleren Neutronenenergie von 4,5 MeV würden etwa 50% mehr Neutronen in die untere Halbkugel emittiert werden als in die obere.

Es zeigte sich aber, daß die Dichte *thermischer* Neutronen dennoch im oberen und unteren Halbraum gleich war; das Verhältnis der Aktivitäten der beiden Sonden war nämlich dasselbe wie bei der Eichung derselben Sonden mit einer absolut geeichten Ra + Be-Neutronenquelle².

III. Eichung und Kontrollmessungen

1. Eichung der Sonden

Zunächst wurde eine absolut geeichte Neutronenquelle² in die Glasapparatur an die Stelle des Be gehängt und die Aktivierung der Sonden durch thermische Neutronen bestimmt.

Diese Eichung ist nur dann sicher richtig, wenn Winkel- und Energieverteilung der Neutronen bei beiden Quellen übereinstimmen. Daß die Anisotropie der Neutronenquelle beim Quellenvergleich keine Rolle spielt, wurde schon unter II. besprochen; zur Berücksichtigung der etwas verschiedenen Spektren wird im Anhang eine Korrektur gegeben.

2. Leereffekt

Nach Einleiten und Ausfrieren der Emanation wurde zunächst der „Leereffekt“ bestimmt. Dazu wurde die Fe-Scheibe der Ausfrierstelle gegenübergestellt, in der die α -Teilchen der hier auftretenden Energien keine Neutronen erzeugen können, so daß die dabei erhaltene Sondenaktivierung vor allem die im Glas gebildeten Neutronen berücksichtigt.

3. Reichweitenkontrolle der α -Strahlen

Um sicherzustellen, daß die α -Teilchen nicht im Präparat selbst vorgebremst waren, wurde deren Reichweitenverteilung mit einem Proportionalzählrohr und einer Luftabsorberstrecke (Abb. 1) gemessen. Die Diskriminatorvorspannung wurde dabei fest, und zwar so eingestellt, daß nur α -Teilchen registriert wurden, die bis über die Mitte des Zählrohres hinaus vordrangen. Durch Variation des Luftdruckes zwischen den beiden Glimmerfolien wurden

** Die chemische Analyse des Be im Anorg. Chem. Institut der Univ. Freiburg ergab einen Gesamtgehalt aller Fremdelemente von höchstens 0,3%.

² P. JENSEN, H. P. TERFLOTH u. H. AVERDUNG, Z. Naturforschg. **10 a**, 825 [1955].

dann Kurven wie in Abb. 2 a aufgenommen. Man kann deutlich die drei α -Gruppen von Rn, RaA und RaC' unterscheiden.

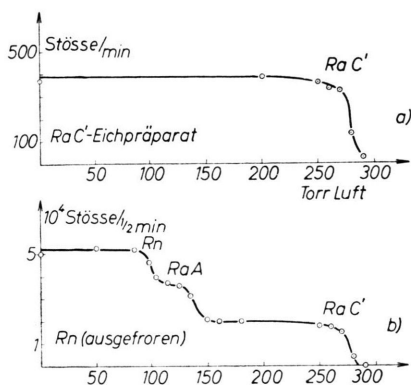


Abb. 2. Reichweitenverteilung der α -Strahlen.

Um eine schwierige absolute Reichweitemessung zu umgehen, wurde eine Vergleichsmessung mit einem sicher „unendlich dünnen“ RaC'-Präparat durchgeführt. Dieses RaC'-Präparat wurde hergestellt, indem ein gesäubertes Cu-Blech bei Zimmertemperatur einige Stunden in gut gereinigte gasförmige Emanation gehängt wurde, bis sich genügend radioaktiver Niederschlag darauf befand. Dann wurden etwa darauf haftende Emanationsreste durch Spülen mit Alkohol entfernt³. Man erhielt mit solchen Präparaten stets Kurven wie in Abb. 2 b.

Der RaC'-Abfall liegt, innerhalb der Meßgenauigkeit, an derselben Stelle wie bei dem ausgefrorenen Rn-Präparat. Demnach fand auch bei letzterem keine merkliche Vorbremmung im Präparat statt.

4. Rückstoßkerne aus der kondensierten Phase

Bei einer unendlich dünnen Rn-Quelle würde man erwarten, daß die Hälfte aller RaA-Kerne beim α -Zerfall als Rückstoßkerne nach vorn wegflögen, entsprechend auch RaB- und RaC'-Kerne. Unter diesen Umständen wäre der Raumwinkel für die (α ,n)-Prozesse nicht mehr anzugeben.

Die Verteilung der Aktivität im Glasraum mußte also nachgeprüft werden. Dazu wurde das RaC, von dem der weitaus größte Anteil der γ -Strahlung der Rn-Folgeprodukte ausgeht, mit Bleikanal und Zählrohr nachgewiesen. Es ergab sich, daß nach Einstellen des radioaktiven Gleichgewichts nur etwa 0,3%

der γ -Strahlung von der Be-Scheibe und Umgebung herkommen. Daraus folgt, daß fast alle Rückstoßatome an der Ausfrierstelle geblieben waren.

Dies kann man nur so erklären, daß durch Kondensation von Fremdmolekülen (Wasser und Quecksilber aus der Emanationsanlage) ein dünner Film über dem Rn entstanden war, der gerade eine solche Dicke hatte, daß fast alle α -Rückstoßatome mit ihren Reichweiten von 0,1–0,2 mm Normalluft darin stecken blieben, während die Reichweiten der α -Teilchen noch nicht merklich verkürzt wurden, wie ja unter 3. gezeigt wurde.

5. Örtliche Verteilung des Rn an der Ausfrierstelle

Zur Berechnung eines „effektiven“ Raumwinkels, den die Be-Scheibe für die α -Quelle hat, mußte die genaue Verteilung der Aktivität an der Ausfrierstelle bestimmt werden. Dazu wurde nach Beendigung des Versuchs die Emanation abgelassen und mit Hilfe von Kernplatten die Belegungsdichte des aktiven Niederschlags gemessen; diese entspricht der Verteilung der Emanation.

6. γ -Eichung des Rn-Präparates

In die Auswertung geht nur das Verhältnis der Präparatstärken der Rn + Be- und der Ra + Be-Quelle ein. Deshalb wurde das Verhältnis der γ -Intensitäten beider Präparate – unter Berücksichtigung von Korrekturen für Präparat- und Kapselabsorption⁴ – mit dem Zählrohr gemessen. (Die Neutronen geben keinen störenden Beitrag zu den Impulszahlen.) Die Eichung mit dem Zählrohr war zulässig, da bei beiden Präparaten praktisch die gleiche γ -Strahlung, nämlich nur die von RaC, gemessen werden mußte.

IV. Ergebnis

Auf gleiche Präparatstärken und Raumwinkel bezogen, ergab sich als Verhältnis der Neutronenausbeuten der Rn + Be-Quelle zur geeichten Ra + Be-Quelle $A = 1,078$ als Mittelwert aus zwei unabhängigen Versuchen mit den Ergebnissen $A_1 = 1,077$ und $A_2 = 1,079$. (Ähnliche Werte ergab ein Vorversuch, bei dem nicht alle Kontrollmessungen ausgeführt werden konnten, nämlich $A_3 = 1,11$, sowie ein Versuch, bei dem das Be direkt vor der Ausfrierstelle stand: $A_4 = 1,12$).

³ H. GEIGER u. W. MAKOWER, Meßmethoden auf dem Gebiete der Radioaktivität. Verlag Vieweg, Braunschweig 1920.

⁴ W. E. PERRY, Proc. Phys. Soc., Lond. **57**, 178 [1945].

Nun hat die geeichte Ra + Be-Quelle eine Ausbeute von 13700 Neutronen/mC · sec^{*}, von denen 0,9% Photoneutronen sind (s. Anhang). Die Ausbeute einer Rn α + Be-Neutronenquelle, bei der die α -Teilchen ihre volle Reichweite in Be zurücklegen, wird dann 14620 n/mC · sec. Um auf die größtmögliche Neutronenausbeute einer Ra + Be-Quelle zu schließen, muß man noch die Neutronen hinzuzählen, die von den α -Teilchen des Ra ohne Folgeprodukte erzeugt werden. Auf Grund von Messungen der absoluten Neutronenausbeuten von Po- α -Teilchen in dicken Be-Targets von ROBERTS⁶ sowie SEGRÉ und WIEGAND⁷ und einer Anregungskurve der letztgenannten Autoren⁷ erhält man für die Ra- α -Teilchen allein 2150 Neutronen/sec · mC Ra ohne Folgeprodukte. Das stimmt recht gut überein mit den von ANDERSON⁸ gemachten Angaben, wonach der Unterschied zwischen den Ausbeuten von idealen Ra + Be- und Rn + Be-Quellen etwa 2000 n/mC · sec sein soll. Daraus ergibt sich als größtmögliche Ausbeute einer Ra + Be-Quelle 16800 Neutronen (ohne Photoneutronen) pro sec und mC Ra mit Folgeprodukten außer Polonium. Dazu kämen noch bis zu einigen Prozent Photoneutronen sowie Po- α -Neutronen. Der durch das Anklingen des Po bedingte Zuwachs beträgt anfänglich etwa 0,4% pro Jahr.

Der mittlere Fehler im vorliegenden Experiment ist 3%, dazu kommt vor allem noch der Fehler in der Angabe der absoluten Neutronenausbeute der Freiburger Ra + Be-Quelle, der mit etwa 4% angesetzt werden kann.

V. Diskussion

Der hier angegebene Höchstwert der Neutronenausbeute einer Ra + Be-Quelle, $Y_0 = 16800$ n/mC sec, setzt den idealen Fall voraus, daß jedes α -Teilchen nur auf Be-Atome trifft. In praxi kann man jedoch schon aus Dimensionsgründen das Verhältnis von Beryllium- zu Radium-Atomen nicht beliebig groß machen, so daß man noch einen praktischen Höchst-

wert Y_1 definieren kann, der von dem Mengenverhältnis Beryllium zu Radium abhängt.

Ähnlich ging z. B. ANDERSON⁸ vor, der auf indirekte Weise einen unserem Y_0 entsprechenden Wert von 17000 n/sec mC Ra (ohne Po) erhielt. Aber auch Y_1 wird nicht erreicht, wenn die Durchmischung der Komponenten nicht optimal ist, und es ist sicher interessant, die tatsächliche Ausbeute Y mit Y_1 zu vergleichen. Zum Beispiel enthält die Freiburger Neutronenquelle nach Angaben der Hersteller^{**} 78 mg RaSO₄ und 405,7 mg Be. Bei völlig homogener Verteilung des RaSO₄ im Be würde die Abbremsung der α -Teilchen zu 91,3% durch Be erfolgen^{***}, so daß die größte erreichbare Neutronenausbeute dieser Quelle $Y_1 = 0,913 \cdot Y_0 = 15340$ n/mC sec wäre. Die praktisch erreichte ist aber nur $Y = 13500$ n/sec mC (ohne Photoneutronen), also wären noch bis zu $(Y_1 - Y)/Y = 14\%$ Steigerung der Ausbeute durch bessere Durchmischung der Komponenten erreichbar gewesen.

Da es nun Quellen gibt, die wie die des Baseler Physikalischen Instituts⁺ sogar noch mehr Neutronen (8%, ohne Photoneutronen) pro mC und sec liefern als die Freiburger Neutronenquelle, ist eine wesentliche Erhöhung der Ausbeute von Ra + Be-Neutronenquellen nicht mehr möglich.

Anhang

Wie in Abschnitt III, 1 gesagt wurde, setzt die angewandte Art der Neutroneneichung, bei der die Dichte thermischer Neutronen nur im Hohlraum verglichen wird, voraus, daß die Spektren der zu vergleichenden Quellen gleich sind. Diese Bedingung ist jedoch nicht genau erfüllt.

Zum Beispiel weicht das Verhältnis der Neutronendichten im Hohlraum vom Verhältnis der Gesamtergiebigkeiten beim Vergleich zweier Quellen durch JENSEN et al.² um etwa 5% ab. Diese Abweichung läßt sich so erklären, daß der durch die Ra- γ -Quanten erzeugte Photoneutronenanteil mit seinem

* In der Arbeit von P. JENSEN, H. P. TERFLOTH und H. AVERDUNG² wird ein Wert von 14 700 n/sec mC Ra gefunden, doch werden dort bereits Gründe angegeben, warum diese Zahl vermutlich etwas zu hoch ist. Nun ist die Freiburger Neutronenquelle durch eine mit größerer Genauigkeit ausgeführte Relativmessung an eine Absoluteichung der Ra + Be-Quelle des Physik. Instituts Basel und diese ihrerseits an ein Netz internationaler Neutronenstandards angeschlossen, so daß unter Berücksichtigung von Tab. 2 bei C. F. v. PLANTA und P. HUBER⁵ ein etwa 7% niedrigerer Wert für die Absolutausbeute der Freiburger Quelle wahrscheinlicher ist.

⁵ C. F. v. PLANTA u. P. HUBER, *Helv. Phys. Acta* **29**, 375 [1956].

⁶ J. H. ROBERTS, U. S. AEC, MDDC-731.

⁷ E. SEGRÉ u. C. WIEGAND, Ergebnisse zitiert bei B. T. FELD, *Exp. Nucl. Phys.* II, New York 1953 (Herausgeber E. SEGRÉ), S. 367.

⁸ H. L. ANDERSON, wie Anm. ⁷, Tab. 16, S. 365.

** Fa. Buchler & Co., Chinin-Fabrik, Braunschweig.

*** Errechnet aus den auf Luft bezogenen atomaren Bremsvermögen für α -Teilchen von 6 MeV, angegeben von H. BETHE und J. ASHKIN⁹.

⁺ Hersteller: Union Minière du Haut-Katanga, Brüssel.

sehr energiearmen Spektrum bei den beiden Quellen verschieden stark ist, wie im folgenden gezeigt werden soll.

Die absolute Photoneutronenausbeute für Ra- γ -Quanten im Be ist bekannt¹⁰, sie läßt sich im Einzelfall aus der Ra-Menge und der durchschnittlichen Weglänge eines γ -Quants im Beryllium berechnen. Bei der Freiburger Ra α +Be-Quelle (78 mg RaSO₄ und 405,7 mg Be in einem Monelzylinder von 8,7 mm Innendurchmesser und gleicher Höhe) ergibt eine etwas vereinfachende Rechnung einen relativen Anteil der Photoneutronen an der Gesamtausbeute von 0,9%, während es bei der Rn α +Be-Quelle nur 0,5% waren.

Bei einem Quellenvergleich im Hohlraum interessiert aber zunächst nicht dieser gesamte Photoneutronenanteil, sondern vielmehr die dazu proportionale Änderung der Neutronendichte im Hohlraum, die mit den Sonden gemessen wird. Dazu wurden folgende Versuche gemacht:

1. Eine 93,3-mg-Radiumquelle wurde mit Be-Quadern umstellt und die Sondenaktivierung im Hohlraum gemessen. Dann wurde das Be entfernt und wiederum die Aktivierung bestimmt. Die Differenz D_1 der beiden Aktivitäten entspricht den Photoneutronen aus dem Be.

2. Mit der Ra α +Be-Quelle an Stelle der Radiumquelle wurden die unter 1. beschriebenen Messungen wiederholt. Dabei ergab sich eine Differenz D_2 , die pro mC Ra um 13% größer war als D_1 .

Während die Photoneutronenerzeugung natürlich die gleiche war wie bei Versuch 1, bleiben also nur 13% übrig, für die vermutlich (n,2n)-Prozesse in den etwa 32 g Be verantwortlich zu machen sind. Neutronenbremsung im Be kam nicht als entscheidende Ursache für die Dichteerhöhung im Hohlraum in Frage. Man erhielt nämlich keine merkliche Zunahme der Sondenaktivität, wenn man die Ra α +Be-Quelle mit soviel Graphit umstellte, daß es hinsichtlich Neutronenbremsung einem Mehrfachen der verwendeten Be-Menge äquivalent war.

Aus der Sondenaktivierung durch die Ra γ +Be-Photoneutronenquelle konnte dann mit Hilfe von Berechnungen der durchschnittlichen Weglänge der γ -Quanten im Be bei der Photoneutronenquelle und in der Ra α +Be-Quelle auf den Anteil der Sondenaktivität im Hohlraum geschlossen werden, der von Photoneutronen herrührt. Er war bei der Freiburger Ra α +Be-Quelle 2,9%, während er bei der Rn α +Be-Quelle 1,6% war. Der durchgeführte Quellenvergleich im Hohlraum bedurfte also im vorliegenden Fall nur einer Korrektur von ungefähr 1%, die im Ergebnis schon berücksichtigt worden ist. Doch können bei stärkeren Quellen, die mehr Be enthalten, leicht größere Werte auftreten, z. B. wäre bei der Baseler Ra α +Be-Quelle⁵ der absolute Photoneutronenanteil etwa 2% und die dadurch bedingte Erhöhung der Dichte thermischer Neutronen in unserem Hohlraum 6% gewesen.

⁹ H. BETHE u. J. ASHKIN, wie Anm. ⁷, S. 200 ff.; sowie M. S. LIVINGSTON u. H. BETHE, Rev. Mod. Phys. **9**, 272 [1937].

¹⁰ E. SÈGRE, wie Anm. ⁷, S. 369, dort als „Standard Yield“ angegeben.