

Der Aktivitätsvergleich wurde für Folien einer Schichtdicke δ von etwa 5 mg/cm^2 durchgeführt, bei denen einerseits die Korrekturen wegen β - und Neutronenabsorption, andererseits aber auch die statistischen Fehler der Zählrate nicht zu groß sind. Die gemessenen Zählraten ν sind in Tab. 1 angegeben; hierbei ist der durch die epithermischen Neutronen bedingte Anteil bereits abgezogen². Der β -Selbstabsorptionsfaktor s_β wurde in der vorangehenden Arbeit² empirisch bestimmt; auch der Korrekturfaktor g wurde dort für unsere Folien berechnet. Als Ansprechwahrscheinlichkeit des 4π -Zählrohres konnte für ionisierende Strahlung $w = 1,00 \pm 0,01$ angenommen werden². Mit diesen Werten wurden in Tab. 1 nach Gl. (1) die Größe $\nu_0 n \mu_{\text{act}}$ berechnet.

Bei Cu^{64} tritt außer den β^+ - und β^- -Übergängen zu Ni^{64} und Zn^{64} auch K-Einfang auf. Der geringe Effekt der hierbei auftretenden RÖNTGEN-Quanten bzw. AUGER-Elektronen konnte vernachlässigt werden. Aus dem Verzweigungsverhältnis⁵

$$N_{\beta^-} : N_{\beta^+} : N_K = 2,0 : 1 : 2,2$$

erhält man daher als mittlere Ansprechwahrscheinlichkeit $w = 0,58$.

Bei Pd^{109} entsteht als Folgeprodukt des β -Zerfalls das Isomer Ag^{109*} ($T_{1/2} = 40 \text{ sec}$, $E = 87,5 \text{ keV}$), das mit Pd^{109} im Zerfallsgleichgewicht steht. Aus dessen Konversionskoeffizient⁶ $\alpha = 21,0$ erhält man als Wahrscheinlichkeit für die Emission eines Elektrons $0,955$ und somit $w = 1,955$.

Mit dem bekannten Aktivierungsquerschnitt von Au^{197} erhielten wir nach Gl. (1) als thermischen

Neutronenfluß am Meßort:

bei einem Quellabstand von 12 cm :

$$1,24 \cdot 10^4 \text{ sec}^{-1} \text{ cm}^{-2},$$

bei einem Quellabstand von 9 cm :

$$1,68 \cdot 10^4 \text{ sec}^{-1} \text{ cm}^{-2},$$

(der Vergleich der Neutronenflüsse in beiden Geometrien wurde mittels Mn-Folien durchgeführt).

Nach Gl. (2) wurde sodann der Aktivierungsquerschnitt σ_{act} der übrigen Substanzen (bezogen auf das Reinisotop) bestimmt und in Tab. 1 mit den bei HUGHES u. a.¹ angegebenen Werten für σ_{act} und σ_a verglichen. Hierbei zeigt sich grundsätzlich Übereinstimmung mit den Tabellenwerten im Rahmen ihrer Fehlergrenzen. Für Mn^{55} und Cu^{63} nähern sich unsere Werte mehr den Absorptionsquerschnitten des betreffenden Isotops ($\sigma_a = 13,2$ bzw. $4,3 \text{ barn}$). Die für Pd^{108} und In^{115} angegebenen Tabellenwerte ($\sigma_{\text{act}} = 12 \pm 3$ bzw. $145 \pm 15 \text{ barn}$) stützen sich lediglich auf die Bestimmung von SEREN u. a.⁷. Demgegenüber finden wir $\sigma_{\text{act}} = 9,3 \pm 0,7$ bzw. $157,6 \pm 4,4 \text{ barn}$.

Die Fehlergrenzen unserer Messung sind im wesentlichen durch die β -Selbstabsorption bedingt, bei Cu^{63} durch die Unsicherheit des Verzweigungsverhältnisses.

Herrn Prof. WIRTZ danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit.

⁵ E. PLASSMANN u. F. R. SCOTT, Phys. Rev. **84**, 156 [1951]. — R. BOUCHEZ u. G. KAYAS, J. Phys. Radium **10**, 110 [1949].

⁶ A. H. WAPPSTRA, Ark. Phys. **7**, 265 [1954].

⁷ L. SEREN, H. N. FRIEDLANDER u. S. H. TURKEL, Phys. Rev. **72**, 888 [1947].

Bestimmung der Diffusionsparameter thermischer Neutronen in Wasser nach einer Vergiftungsmethode

Von K. H. BECKURTS und O. KLÜBER

Aus dem Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
der Kernreaktor-Bau- und Betriebsgesellschaft mbH., Karlsruhe
(Z. Naturforsch. **13 a**, 822—825 [1958]; eingegangen am 30. Juli 1958)

Es wird über die Bestimmung der Diffusionsparameter thermischer Neutronen in leichtem Wasser nach einem einfachen stationären Verfahren berichtet. Die Analogie dieses Verfahrens zum nicht-stationären Impulsverfahren wird diskutiert. Die Resultate werden mit den Ergebnissen neuerer Bestimmungen nach der Impulsmethode verglichen.

Für die aus der Relaxationslänge eines thermischen Neutronenfeldes bestimmbare Diffusionslänge L gilt bekanntlich:

$$\frac{1}{L^2} = \frac{\nu \Sigma_a}{D}. \quad (1)$$

Dabei ist $\nu \Sigma_a \text{ sec}^{-1}$ die Absorptionswahrscheinlichkeit, die bei reinem $1/\nu$ -Absorber vom Neutronenspektrum nicht abhängt; $D = \lambda_{\text{tr}} \bar{v}/3 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$ ist der Diffusionskoeffizient. D stellt einen Mittelwert über das Neutronenspektrum dar, das bei sehr schwacher



Absorption als MAXWELL-Verteilung mit der Temperatur T_0 des Moderators angenommen werden kann.

Setzt man einer Streusubstanz mit dem Absorptionsquerschnitt Σ_a einen Absorber zu, so daß sich der Absorptionsquerschnitt um Σ_a' erhöht, so gilt für die Diffusionslänge des „vergifteten“ Streumediums¹

$$\frac{1}{L^2} = \frac{v \Sigma_a}{D} + \frac{v \Sigma_a'}{D}. \quad (2)$$

Man kann also durch Messung von L als Funktion von Σ_a' die Diffusionsparameter D und Σ_a getrennt bestimmen. Die Methode wurde in dieser einfachen Form von COHEN² vorgeschlagen. Ihre Anwendung auf leichtes Wasser liegt nahe, da sich Wasser leicht mit Absorbieren vermischen läßt und da insbesondere leichtes Wasser in der letzten Zeit mehrfach nach der Impulsmethode untersucht worden ist³⁻⁷.

1. Messungen

Die Diffusionslänge wurde in reinem Wasser und in drei verschiedenen starken Boraxlösungen gemessen. Ihre Bestimmung erfolgte in der üblichen Weise aus einer Analyse des Feldverlaufes in der Umgebung einer Quelle thermischer Neutronen. Diese Quelle wurde durch Cadmium-Differenzmessung mit einer (Ra + Be)-Neutronenquelle und einer konzentrischen Cd-Kugelschale von 38 mm Radius realisiert. Sie befand sich in der Mitte eines zylindrischen Wassergefäßes von 50 cm Durchmesser und 60 cm Höhe, das als unendlich ausgedehnt anzusehen ist. Die Messung des Neutronenflusses erfolgte längs eines Radiusvektors mit Scheibensonden, die in Plexiglashaltern in sehr gut reproduzierbaren Abständen vom Kugelzentrum angebracht werden konnten. Der Mindestabstand r der Sonde vom Kugelzentrum war bei allen Messungen 6 cm. Im Bereich $r > 6$ cm können Störungen infolge der Absorption epithermischer Neutronen in der Cadmiumkugel, der Abweichung der Anordnung von der Kugelsymmetrie, der Feldverzerrung durch die Sondenträger und der schwachen Ortsabhängigkeit der Aktivierungsstörung mit Sicherheit vernachlässigt werden. Abb. 1 zeigt den in reinem Wasser und in einer der Absorberlösungen gemessenen Feldverlauf. Aufgetragen ist jeweils die Größe $\ln r \Phi$ über r . Es ergeben sich Geraden, aus deren Steigung unmittelbar L folgt.

Es wurde darauf geachtet, daß die Moderatortemperatur T_0 innerhalb jeder Meßreihe konstant blieb; die

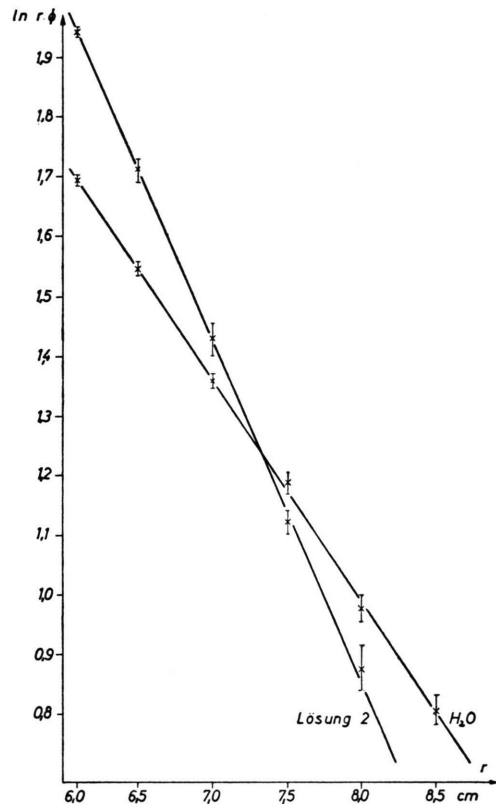


Abb. 1

Abb. 1. Ausgleichsgeraden zur Bestimmung der Diffusionslänge für H_2O und Lösung 2. I Meßpunkte.

mittlere Moderatortemperatur jeder Meßreihe ist in Tab. 1, in der die Resultate für L zusammengestellt werden, mit enthalten. Mit $dD/dT = 120 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1} \text{ grad}^{-1}$ nach KÜCHLE⁶ wurden die Werte von L auf eine einheitliche Moderatortemperatur von 20°C umgerechnet.

Der zusätzliche Absorptionsquerschnitt Σ_a' folgt aus der Anzahl N^B der im cm^3 gelösten Boratome⁸ und aus dem atomaren Absorptionsquerschnitt σ_a^B des Bors. N^B wurde auf pyknometrischem Wege bestimmt. Da für σ_a^B in der Literatur uneinheitliche Angaben gemacht werden⁹, wurde der Absorptionsquerschnitt des hier verwendeten Bors nach der Differenzmethode von v. DARDEL und SJÖSTRAND¹⁰ bestimmt. Es ergab sich $\sigma_a^B = 747 \pm 5$ barn bei

¹ Es wird angenommen, daß sich die Streueigenschaften durch Zugabe des Absorbers nicht ändern.

² E. R. COHEN, Chem. Eng. Progress **50**/12, 73 [1954].

³ G. F. v. DARDEL u. N. G. SJÖSTRAND, Phys. Rev. **96**, 1245 [1954].

⁴ A. V. ANTONOV et al., Genf P/661 [1955].

⁵ A. BRACCI u. C. COCEVA, Nuovo Cim. **4**/1, 95 [1956].

⁶ M. KÜCHLE, unveröffentlicht [1957].

⁷ W. H. DIO u. E. SCHOPPER, Nucl. Phys. **6**/2, 175 [1958].

⁸ Die Absorption der übrigen Atome im Borax-Molekül ist zu vernachlässigen.

⁹ P. A. EGELSTAFF, J. Nucl. Energy **5**/1, 41 [1957].

¹⁰ G. F. v. DARDEL u. N. G. SJÖSTRAND, Phys. Rev. **96**, 1566 [1954].

	Moderator- temperatur T_0 in °C	L cm	L cm bei $T_0 = 20^\circ\text{C}$	$\overline{v \Sigma_a'}$ sec ⁻¹
Reines Wasser	15	$2,70 \pm 0,03$	$2,72 \pm 0,03$	—
Lösung 1	17	$2,25 \pm 0,03$	$2,26 \pm 0,03$	$2,42 \cdot 10^3$
Lösung 2	17	$1,75 \pm 0,03$	$1,76 \pm 0,03$	$7,19 \cdot 10^3$
Lösung 3	17	$1,55 \pm 0,03$	$1,57 \pm 0,03$	$9,88 \cdot 10^3$

Tab. 1. Resultate für L .

$v = 2,2 \cdot 10^5$ cm/sec¹¹. Mit diesem Wert von σ_a^B und den pyknometrisch bestimmten N^B wurden die in der Tab. 1 enthaltenen Werte von $\overline{v \Sigma_a'}$ gewonnen.

2. Auswertung und Berücksichtigung der „Härtung“

Eine Auswertung der L -Werte aus Tab. 1 mit Gl. (1) stößt auf folgende Bedenken: In einem stärker absorbierenden Streumedium findet, auch wenn es quellenfrei ist, eine Verschiebung des Neutronenspektrums nach höherer Energie statt. Man bezeichnet diesen Effekt als „Härtung“^{3, 12, 13}. Diese Härtung hat zur Folge, daß der Diffusionskoeffizient eine Funktion des Absorptionsquerschnittes wird; bezeichnet man mit D wieder den Diffusionskoeffizienten für eine MAXWELL-Verteilung von Moderator-temperatur und mit \tilde{D} den tatsächlich beobachtbaren Diffusionskoeffizienten, so gilt in 1. Näherung mit $L^2 = \tilde{D}/\Sigma_a + \Sigma_a'$

$$\tilde{D} = D + C/L^2. \quad (3)$$

Der Härtungseffekt ist das Gegenstück zu dem bei nichtstationären Messungen beobachteten Diffusionskühlungseffekt; die Konstante C cm⁴ sec⁻¹ ist genau die, die auch zur Beschreibung der Diffusionskühlung benutzt wird.

An die Stelle von Gl. (2) tritt also:

$$\frac{1}{L^2} = \frac{\overline{v \Sigma_a}}{D} + \frac{\overline{v \Sigma_a'}}{D} - \left(\frac{\overline{v(\Sigma_a + \Sigma_a')}}{D} \right)^2 \frac{C}{D}. \quad (4)$$

Man erkennt an Gl. (4) die Analogie zwischen Vergiftungs- und Härtungsmethode; beide erlauben es, unabhängig Werte für Σ_a , D und C zu erhalten. Wegen des unvergleichbar geringeren Zeitaufwandes für die Messungen und der höheren erreichbaren

Genauigkeit ist allerdings die Impulsmethode der Vergiftungsmethode als Standardmeßverfahren vorzuziehen.

Die Genauigkeit unserer Messung in Wasser reicht nicht zu einer verlässlichen Bestimmung der Größe C aus. Das hängt damit zusammen, daß selbst in der am stärksten absorbierenden Lösung 3 der Einfluß der Härtung gering ist; für Lösung 3 macht der dritte Term in Gl. (4) nur etwa 4% der beiden ersten Terme aus. Untersuchungen in wesentlich stärker absorbierenden Lösungen sind aber nicht möglich, da dann die Diffusionslänge nicht mehr genau meßbar ist. Die Härtung wurde daher rechnerisch berücksichtigt, indem aus jedem gemessenen L mit Gl. (3) und $C = 3650$ cm⁴/sec (aus Impulsmessungen von KÜCHLE⁶) dasjenige L_0 errechnet wurde, das bei Abwesenheit des Härtungseffektes — d. h. bei einer Neutronentemperatur von 20°C — vorliegen würde. Die Werte von L_0 , für die in Strenge die Gl. (2) gelten sollte, sind in der Tab. 2 zusammengestellt.

Abb. 2 zeigt $1/L_0^2$ als Funktion von $\overline{v \Sigma_a'}$. Es ergibt sich eine Gerade, aus deren Steigung die Diffusionsparameter

$$D = 35\,300 \pm 1100 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1},$$

$$\overline{v \Sigma_a} = 4800 \pm 180 \text{ sec}^{-1}$$

folgen. Daraus berechnet man die Transportweglänge: $\lambda_{tr} = 0,427 \pm 0,014$ cm und den Einfangquerschnitt des Wasserstoffatoms bei $v = 2,2 \cdot 10^5$ cm²/sec: $\sigma_a = 0,327 \pm 0,012$ barn.

Es wäre instruktiv, in einem Streumedium, bei dem der Härtungseffekt eine größere Rolle spielt, eine Bestimmung von C nach der Vergiftungsmethode durchzuführen und das Resultat mit dem nichtstationären Messungen zu vergleichen. Solche Untersuchungen an *Graphit* könnten zur Klärung der unterschiedlichen Resul-

¹¹ Diese Bestimmung erfolgte mit der Neutronenimpulsanlage des Instituts. Wir danken Herrn M. KÜCHLE für seine Unterstützung bei der Durchführung dieser Messung.

¹² H. HURWITZ JR. u. M. NELKIN, Nucl. Sci. Eng. 3, 1 [1958].

¹³ K. WIRTZ u. K. H. BECKURTS, Elementare Neutronenphysik, Kap. 11, Springer-Verlag, Berlin · Göttingen · Heidelberg 1958.

	L_0 cm
reines Wasser	$2,70 \pm 0,03$
Lösung 1	$2,24 \pm 0,03$
Lösung 2	$1,73 \pm 0,03$
Lösung 3	$1,53 \pm 0,03$

Tab. 2. Diffusionslängen nach Eliminierung des Härtungseffektes.

	D in cm^2/sec	$\bar{v}\Sigma_a$ in sec^{-1}	L_0 in cm
ANTONOV (4)	34650 ± 1000	4830 ± 140	$2,68 \pm 0,11$
BRACCI u. COCEVA (5)	34600 ± 1100	4950 ± 140	$2,64 \pm 0,11$
KÜCHLE (6)	34800 ± 500	4880 ± 140	$2,67 \pm 0,05$
DIO u. SCHOPPER (7)	35200 ± 600	4800	$2,71 \pm 0,05$
Diese Arbeit	35300 ± 1100	4800 ± 180	$2,70 \pm 0,03$

Tab. 3. Zusammenstellung von Resultaten für D , $\bar{v}\Sigma_a$ und L_0 in leichtem Wasser.

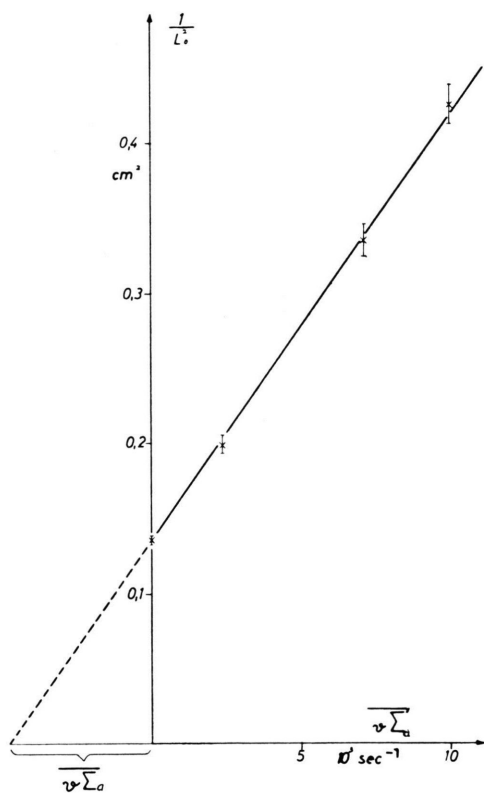


Abb. 2. Zur Bestimmung der Diffusionsparameter aus den bei verschiedener Absorption gemessenen Diffusionslängen (nach Härtungskorrektur).

tate^{14, 15} bei der nichtstationären Bestimmung von C beitragen.

¹⁴ G. DE SAUSSURE u. E. G. SILVER, unveröffentlichter Oak-Ridge-Report 1957.

¹⁵ K. H. BECKURTS, Nucl. Sci. Eng. 2, 516 [1957].

3. Vergleich mit anderen Messungen

In der Tab. 3 vergleichen wir unsere Resultate für D , $\bar{v}\Sigma_a$ und $L_0 = \sqrt{D/\bar{v}\Sigma_a}$ mit den Ergebnissen einiger neuer Bestimmungen nach der *Impuls-methode*. Alle Werte beziehen sich auf $T_0 = 20^\circ\text{C}$.

Die Übereinstimmung der verschiedenen Bestimmungen ist hervorragend, was als Beweis der Konsistenz beider Meßverfahren anzusehen ist.

In Tab. 4 wird der in reinem Wasser gemessene Wert von L mit den Ergebnissen anderer *stationärer Bestimmungen* verglichen. Alle Werte beziehen sich auf $T_0 = 20^\circ\text{C}$; jedoch ist die Härtung nicht eliminiert, es handelt sich also um direkt gemessene Werte.

	L in cm
BARKOV ¹⁶	$2,69 \pm 0,02$
DE JUREN und ROSENWASSER ¹⁷	$2,75 \pm 0,02$
Diese Arbeit	$2,72 \pm 0,03$

Tab. 4. Resultate direkter Bestimmungen der Diffusionslänge.

Die Messungen von BARKOV und die von DE JUREN und ROSENWASSER wurden beide mit Photoneutronenquellen geringer Energie durchgeführt; die Ursache der starken Diskrepanz ist unbekannt. Unser Meßwert ist gleich dem Mittelwert dieser beiden Bestimmungen.

Diese Arbeit wurde von Herrn Professor K. WIRTZ angeregt, wofür wir ihm besonderen Dank sagen möchten.

¹⁶ L. M. BARKOV et al., J. Nucl. Energy 5/1, 41 [1957].

¹⁷ J. A. DE JUREN u. H. ROSENWASSER, J. Res. Nat. Bur. Stand. 51, 203 [1953].