

schied festzustellen. Extrapoliert man jedoch den von uns gefundenen linearen Zusammenhang⁵ zwischen D_0 und dem Sauerstoffüberschuß zu dem hier gefundenen Wert D_0 der Geraden g ($Q = 46,1 \pm 2 \text{ kcal/Mol}$, $\log D_0 = 8,9 \pm 0,4 \cdot 10^{-9}$), so erhält man eine Zusammensetzung von ca. $\text{UO}_{2,0005}$, was mit unserer Sauerstoffsbestimmungsmethode nicht festzustellen ist. Allerdings kann man den oben erwähnten linearen Zusammenhang nicht bedenkenlos zu $\text{UO}_{2,000}$ extrapolieren. Nähme man z. B. an, daß die Überschußsauerstoffmenge vergleichbar mit der Menge der im Gitter erzeugten Xe-Atome sei, so ergibt eine lineare Extrapolation einen Wert von $\log D_0 = -13$, und solch kleine Diffusionskoeffizienten sind bisher noch nicht festgestellt worden.

Abschließend sollen die für die Spaltgasdiffusion in UO_2 angegebenen Werte noch einmal zusammengestellt werden (vgl. Abb. 4). Hierbei sind die innerhalb der Versuchsfehlergrenzen miteinander übereinstimmenden Versuchsreihen in Form von „Bändern“ zusammengefaßt: die Autoren der einzelnen Versuchsreihen sind dem Abbildungstext und dem Literaturverzeichnis zu entnehmen.

Auf Grund der vorangegangenen Ausführungen können wir uns nicht der Annahme anderer Autoren anschließen, daß die Aktivierungsenergien für die

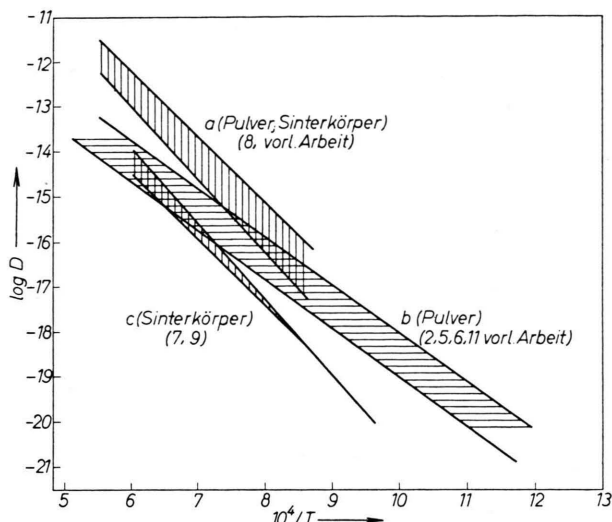


Abb. 4. Spaltgasdiffusion in UO_2 nach bisherigen Arbeiten. Die Ziffern an den Kurven weisen auf die Literaturzitate hin.

Selbstdiffusion von Uran¹⁸ und Sauerstoff sowie die Fremddiffusion der Edelgase von praktisch gleicher Größe seien. Dagegen zeigt die Fremddiffusion der Spaltprodukte¹⁹ Y-91, Zr-95 und Pm-147 sowohl für die Volumen- als auch für die Korngrenzendiffusion vergleichbare Werte der Aktivierungsenergie.

¹⁸ F. SCHMITZ u. R. LINDNER, Z. Naturforsch. **16 a**, [1961], im Druck.

¹⁹ F. SCHMITZ, private Mitteilung.

Austrittswahrscheinlichkeit von Rückstoßkernen bei α , γ -Reaktionen

Von J. BIRSACK und K. E. ZIMEN

Aus dem Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung Berlin, Sektor Kernchemie
(Z. Naturforsch. **16 a**, 849—853 [1961]; eingegangen am 3. Mai 1961)

Herrn Prof. Dr. N. RIEHL zum 60. Geburtstag gewidmet

Ausgehend von der schon bekannten Austrittswahrscheinlichkeit eines Rückstoßkerns mit bestimmter Energie und Reichweite aus der Oberflächenschicht eines Festkörpers wird die Austrittswahrscheinlichkeit abgeleitet für solche Fälle, bei denen ein Spektrum von Rückstoßreichweiten vorliegt, wie z. B. bei n, p -Reaktionen mit Reaktor-neutronen. Die allgemeinen Ableitungen werden auf die Spezialfälle $\text{Al}(n, p)\text{Mg}$ und $\text{Al}(n, \alpha)\text{Na}$ angewandt.

1. Austrittswahrscheinlichkeit eines Rückstoßkerns

Bei α -Umwandlungen und bei binuklearen Reaktionen ohne Impulsübertragung erhalten alle Rückstoßkerne die gleiche Energie E_R und damit eine bestimmte Rückstoßreichweite R . Für die Austrittswahrscheinlichkeit eines Rückstoßkerns ε_R gilt

dann nach FLÜGGE und ZIMEN¹:

$$\varepsilon_R = \frac{1}{4} \frac{F}{V} R \quad (\text{für } \varepsilon_R \lesssim 0,4). \quad (1)$$

F : Oberfläche, V : Volumen. Die Beziehung gilt unabhängig von der Form des Festkörpers, solange nur R klein ist gegen die charakteristische Abmes-

¹ S. FLÜGGE u. K. E. ZIMEN, Z. phys. Chem. **42**, 179 [1939].



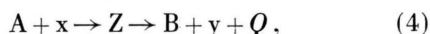
sung des Körpers (Radius bzw. Kantenlänge etc.). Ohne diese Einschränkung gilt für kugelförmige Körper mit dem Radius r :

$$\varepsilon_R = \frac{3}{4} \frac{R}{r} - \frac{1}{16} \left(\frac{R}{r} \right)^3 \quad (2r \geq R), \quad (2)$$

und für würfelförmige Körper der Kantenlänge a (vgl. ZIMEN²):

$$\varepsilon_R = \frac{3}{2} \frac{R}{a} - \frac{2}{\pi} \left(\frac{R}{a} \right)^2 + \frac{1}{4\pi} \left(\frac{R}{a} \right)^3 \quad \left(\frac{1}{2}a \geq R \right). \quad (3)$$

Bei Kernreaktionen mit schnellen Teilchen nach der allgemeinen Reaktionsgleichung



die wir kurz mit x, y -Reaktionen bezeichnen, wird Impuls und Energie vom Geschossteilchen x auf den Zwischenkern Z übertragen, und die Energie des Rückstoßkerns B hängt vom Winkel Θ zwischen der Einfallrichtung von x und der Austrittsrichtung von B („Rückstoßwinkel“) ab. Damit wird die Rückstoßreichweite R des gebildeten Kerns B eine Funktion der Energie E des einfallenden Teilchens und des Rückstoßwinkels Θ , d. h. an die Stelle von Gl. (1) tritt für diesen Kern *

$$\varepsilon_R(E, \Theta) = \frac{1}{4} \frac{F}{V} R(E, \Theta). \quad (5)$$

Um die Austrittswahrscheinlichkeit eines beliebigen Rückstoßkernes zu gewinnen, ist es somit zunächst erforderlich festzustellen, mit welcher Wahrscheinlichkeit ein bestimmtes E und ein bestimmtes Θ auftreten.

Die Wahrscheinlichkeit dafür, daß gerade ein Teilchen der Energie E bis $E + dE$ die betrachtete Reaktion auslöst, ist gegeben durch

$$dW(E) = \sigma(E) d\Phi(E) / \int_0^\infty \sigma(E) d\Phi(E), \quad (6)$$

wenn $\sigma(E)$ den Reaktionsquerschnitt und $d\Phi(E)$ den Teilchenfluß im Energieintervall E bis $E + dE$ bedeuten.

Ebenso erhält man die Wahrscheinlichkeit dafür, daß zwischen der Flugrichtung des Rückstoßkernes und der Einfallrichtung des Geschossteilchens (im Schwerpunktsystem) ein Winkel Θ bis $\Theta + d\Theta$ auftritt. Diese Wahrscheinlichkeit beträgt

$$dW(\Theta) = \sin \Theta d\Theta / \int_0^\pi \sin \Theta d\Theta, \quad (7)$$

wenn man die plausible Voraussetzung macht, daß der im Schwerpunktsystem ruhende Zwischenkern den Rückstoßkern in jede Richtung des Raumes mit gleicher Wahrscheinlichkeit ausstoßen kann.

Die Wahrscheinlichkeit dafür, daß sowohl die Reaktion von einem Teilchen der Energie zwischen E und $E + dE$ ausgelöst wird, als auch der Rückstoßwinkel zwischen Θ und $\Theta + d\Theta$ liegt und schließlich der gebildete Rückstoßkern den Festkörper verläßt, erhält man als Produkt der Einzelwahrscheinlichkeiten (5), (6) und (7) zu

$$\begin{aligned} d^2W_A(E, \Theta) &= \varepsilon_R(E, \Theta) \cdot dW(E) \cdot dW(\Theta) \\ &= \frac{1}{4} \frac{F}{V} \frac{R(E, \Theta) \sigma(E) \sin \Theta d\Theta d\Phi(E)}{\int_0^\infty \sigma(E) \sin \Theta d\Theta d\Phi(E)}. \end{aligned} \quad (8)$$

Die Austrittswahrscheinlichkeit für beliebige E und beliebige Θ gewinnt man daraus durch Integration über alle vorkommenden Teilchenenergien und Rückstoßwinkel:

$$W_A = \frac{1}{4} \frac{F}{V} \frac{\int_0^\infty \int_0^\pi R(E, \Theta) \sigma(E) \sin \Theta d\Theta d\Phi(E)}{\int_0^\infty \int_0^\pi \sigma(E) \sin \Theta d\Theta d\Phi(E)}. \quad (9)$$

Dieses Ergebnis läßt eine relativ einfache Deutung zu: Der rechts stehende Quotient der beiden Doppelintegrale ist nichts anderes als ein Mittelwert der auftretenden Reichweiten, wobei jede Reichweite $R(E, \Theta)$ mit ihrer relativen Häufigkeit als Gewichtungsfaktor angesetzt wird. Bezeichnet man den so gebildeten Mittelwert mit \bar{R} und die Austrittswahrscheinlichkeit wieder mit ε_R , dann läßt sich Gl. (9) in der gleichen Form wie Gl. (1) schreiben:

$$\varepsilon_R = \frac{1}{4} \frac{F}{V} \bar{R}. \quad (9a)$$

Diese vereinfachte Schreibweise bedeutet natürlich nicht, daß \bar{R} eine Konstante ist; vielmehr hat, wie Gl. (9) zeigt, das Energiespektrum $d\Phi(E)$ einen wesentlichen Einfluß auf \bar{R} . Bei Bestrahlungen im Reaktor z. B. wird \bar{R} also verschiedene Werte annehmen, je nach der Form des Neutronenspektrums an der Stelle, an der das Target bestrahlt wird. In einer Reaktorposition mit stärkerem Anteil von hohen Neutronenenergien z. B. werden die längeren Rückstoßreichweiten relativ häufiger auftreten und den Mittelwert \bar{R} vergrößern.

² K. E. ZIMEN, Z. phys. Chem. **192**, 1 [1943].

* Unter der Annahme einer räumlich isotropen Einstrahlung der Geschossteilchen, z. B. Reaktorneutronen.

2. Energie eines Rückstoßkernes

Um die Reichweite $R(E, \Theta)$ eines Rückstoßkernes und damit nach Gl. (9) seine Austrittswahrscheinlichkeit berechnen zu können, muß zunächst seine Energie E_R bekannt sein. E_R gewinnt man am zweckmäßigsten durch eine Rechnung im Schwerpunktsystem, woraus zwei Vorteile erwachsen: Einerseits die relativ einfache Rechnung und andererseits der Umstand, daß der Zwischenkern in diesem System ruht, so daß der Rückstoßkern in jede Richtung mit gleicher Wahrscheinlichkeit und gleicher Energie abgestoßen werden kann.

Im Schwerpunktsystem bewegt sich der Targetkern, der im Laborsystem ruhen soll, mit der Geschwindigkeit

$$v = -p_1/M_1 \quad (10)$$

dem Geschoßteilchen entgegen, wobei M_1 die Masse des Targetkerns und p_1 der Impuls des Geschoßteilchens sein soll. Diesem letzteren Impuls entspricht im Laborsystem die Geschoßenergie

$$E = \frac{(p_1 - m_1 v)^2}{2 m_1} = \frac{p_1^2}{2 m_1} \frac{(M_1 + m_1)^2}{M_1^2}, \quad (11)$$

wenn m_1 die Masse des Geschoßteilchens bezeichnet.

Die Energie des Rückstoßkerns nach dem Stoß ergibt sich aus dem Energieerhaltungssatz. Mit den Bezeichnungen der Abb. 1 lautet er

$$\frac{p_2^2}{2 m_2} + \frac{P_2^2}{2 M_2} = \frac{p_1^2}{2 m_1} + \frac{P_1^2}{2 M_1} + Q,$$

wenn Q die Reaktionsenergie ist. Setzt man hier die im Schwerpunktsystem gültige Beziehung $p_v^2 = P_v^2$ ($v = 1, 2$) ein und löst nach P_2^2 auf, so erhält man die Energie des Rückstoßkerns im Schwerpunktsystem:

$$E_{R,S} = \frac{P_2^2}{2 M_2} = \frac{m_2}{m_2 + M_2} \left(\frac{p_1^2}{2} \frac{m_1 + M_1}{m_1 M_1} + Q \right). \quad (12)$$

Diese Energie ist unabhängig vom Rückstoßwinkel Θ .

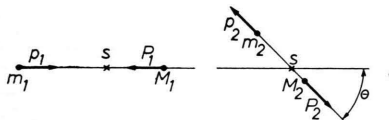


Abb. 1. Massen und Impulse: 1. vor dem Stoß, 2. nach dem Stoß (S=gemeinsamer Schwerpunkt).

Zu der Rückstoßenergie im Laborsystem gelangt man, indem man $M_2 v$ von der Impulskomponente

in Einfallrichtung, d. i. $P_2 \cos \Theta$, subtrahiert, die Impulskomponente senkrecht dazu, d. i. $P_2 \sin \Theta$, aber unverändert läßt:

$$E_R = \frac{1}{2 M_2} [(P_2 \cos \Theta - M_2 v)^2 + (P_2 \sin \Theta)^2] \\ = \frac{P_2^2}{2 M_2} + \frac{M_2 v^2}{2} - v P_2 \cos \Theta.$$

Durch Einsetzen von P_2 aus Gl. (12), p_1^2 aus Gl. (11) und v aus Gl. (10) erhält man – wenn man noch berücksichtigt, daß $m_2 + M_2 \approx m_1 + M_1$ ist – das Resultat:

$$E_R(E, \Theta) = \frac{1}{(m_1 + M_1)^2} \left[(m_2 M_1 + m_1 M_2) E \right. \\ \left. + m_2 (m_1 + M_1) Q \right. \\ \left. + 2 \sqrt{m_1 m_2 M_2 (m_1 + M_1)} E \left(\frac{M_1}{m_1 + M_1} E + Q \right) \cos \Theta \right]. \quad (13)$$

Wie man sieht, hängt diese Energie vom Rückstoßwinkel Θ im Schwerpunktsystem und von der Geschoßenergie E ab. Über die Verteilungen, denen diese Parameter unterliegen, wurde schon im Abschnitt 1 gesprochen. Man erkennt ferner, daß bei negativen Q -Werten die Reaktion nur bei Geschoßenergien

$$E \geq \frac{m_1 + M_1}{M_1} |Q|$$

möglich ist, da anderenfalls die rechtsstehende Wurzel komplex wird.

3. Reichweite-Energie-Beziehung für Rückstoßkerne

Eine theoretische Reichweite-Energie-Relation für beliebige Ionen mit beliebiger Energie läßt sich noch nicht angeben (vgl. SEGRÉ³).

Ebenso unzureichend sind die bisher vorliegenden Reichweitenmessungen. Die experimentellen Ergebnisse beschränken sich ebenso wie die theoretischen auf leichteste⁴ oder schwerere⁵ Kerne, so daß man nicht in der Lage ist, z. B. für Na- oder Mg-Rückstoßkerne in Aluminium eine empirische Reichweite-Energie-Beziehung aufzustellen.

Es bleibt demnach nur die Möglichkeit einer ersten Approximation. Man kann zu diesem Zweck von der in Anm. ³ auf S. 219 für Aluminium angegebenen Reichweite-Kurve von α -Teilchen ausgehen. Diese Kurve läßt sich in dem in Frage kommenden unteren Energiebereich sehr gut als $R \sim E^{1.7}$ dar-

³ E. SEGRÉ, Exper. Nucl. Phys., Vol. I, New York 1953.

⁴ S. D. WARSHAW, Phys. Rev. **76**, 1759 [1949].

⁵ J. M. ALEXANDER u. M. F. GAZDIK, Phys. Rev. **120**, 874 [1960.]

stellen. Unter der Voraussetzung, daß die Kurve richtig ist, wird man keinen allzu großen Fehler machen, wenn man auch für leichte Rückstoßkerne

$$R = a E^{1,7} \quad (E \text{ in MeV}) \quad (14)$$

ansetzt. Der Faktor a , die Reichweite für $E = 1$ MeV, muß dabei aber unbestimmt bleiben, weil es für diesen relativ niedrigen Energiebereich keine gültige Theorie gibt, die eine Berechnung aus den bekannten Werten a_{proton} oder a_α gestattet.

Um auch eine andere Rechtfertigung für die Formel (14) zu geben, sei noch darauf hingewiesen, daß für diese relativ niedrigen Energien einerseits die GEIGER-Beziehung $R \sim E^{1,5}$ (s. Anm. ⁶) eine Näherung darstellen soll und andererseits sogar für weit schwerere Teilchen in ähnlicher Substanz (Glas) von FLÜGGE und ZIMEN ein Zusammenhang $R \sim E^2$ festgestellt worden ist (s. Anm. ¹, S. 201).

4. Zwei Spezialfälle: Austrittswahrscheinlichkeit von Mg-27- und Na-24-Kernen aus Aluminium

Die Berechnung der Austrittswahrscheinlichkeit nach Gl. (9) soll am Beispiel von Mg-27- und Na-24-Rückstoßkernen durchgeführt werden, wobei mit dem Neutronenspektrum des Reaktors BER gerechnet wird.

Al²⁷(n,p)Mg²⁷

$$m_1 = 1 \text{ M. E.}, \quad M_1 = 27 \text{ M. E.}, \quad m_2 = 1 \text{ M. E.}, \\ M_2 = 27 \text{ M. E.}, \quad Q = -1,9 \text{ MeV.}$$

Mit diesen Werten folgt aus Gl. (13) und Gl. (14) für die Reichweite der Mg-27-Kerne:

$$R(E, \Theta) = a_{\text{Mg}} [0,069(E - 1 + \sqrt{E(E - 2)} \cos \Theta)]^{1,7} \\ (E \text{ in MeV}). \quad (15)$$

Al²⁷(n,α)Na²⁴

$$m_1 = 1 \text{ M. E.}, \quad M_1 = 27 \text{ M. E.}, \quad m_2 = 4 \text{ M. E.}, \\ M_2 = 24 \text{ M. E.}, \quad Q = -3,2 \text{ MeV.}$$

Mit diesen Werten folgt aus Gl. (13) und Gl. (14) für die Reichweite der Na-24-Kerne:

$$R(E, \Theta) = a_{\text{Na}} [0,168 E - 0,457 \\ + 0,13 \sqrt{E(E - 3,2)} \cos \Theta]^{1,7} \\ (E \text{ in MeV}). \quad (16)$$

⁶ H. GEIGER, Proc. Roy. Soc., Lond. A **83**, 492, 505 [1910].

Das Neutronenspektrum im Zentral-Kanal eines homogenen Lösungsreaktors ("water boiler", Typ L-54 der Atomics International) ist kürzlich in Frankfurt gemessen worden. Die nach der Photoplattenmethode gewonnenen Ergebnisse* für Neutronenenergien oberhalb 2 MeV, die für die betrachteten Al(n,p)Mg- und Al(n,α)Na-Reaktionen in Frage kommen, zeigt die Abb. 2. Man erkennt an der eingetragenen Geraden, daß in dem betreffenden Energiebereich

$$\frac{d\Phi(E)}{dE} = b e^{-0,79 E} \quad (E \text{ in MeV}) \quad (17)$$

eine geeignete analytische Darstellung des Spektrums ist.

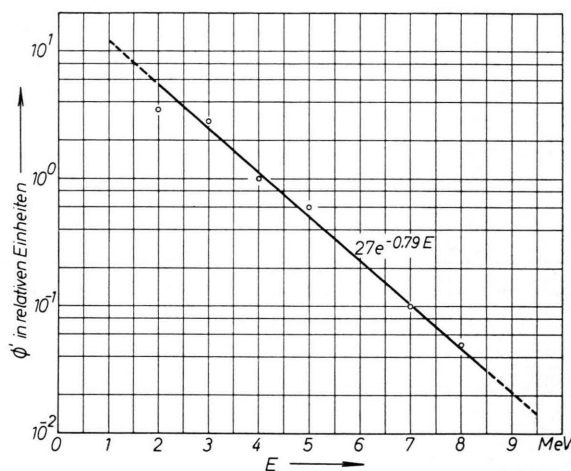


Abb. 2. Energiespektrum der Neutronen oberhalb 2 MeV (nach persönlicher Mitteilung von Prof. E. SCHOPPER, Frankfurt a. M.).

Das Resultat (17) steht in guter Übereinstimmung mit dem Spaltspektrum, das sich annähernd als $\sinh \sqrt{2E} \cdot e^{-E}$ oder noch einfacher als $\sqrt{E} e^{-E}$ darstellen läßt. Die beiden Funktionen ergeben, wenn man sie um die mittlere Energie von 5 MeV entwickelt und linearisiert

$$\sinh \sqrt{2E} \cdot e^{-E} = e^{-E + \log \sinh \sqrt{2E}} \\ \rightarrow e^{-E + 0,32 E} = e^{-0,68 E}, \\ \sqrt{E} e^{-E} = e^{-E + 1/2 \log E} \rightarrow e^{-E + 0,1 E} = e^{-0,9 E},$$

was sich in dem betrachteten Energiebereich hinreichend mit Gl. (17) deckt.

Es bleiben nur noch die Reaktionsquerschnitte $\sigma_{n,p}$ bzw. $\sigma_{n,\alpha}$ zu ermitteln. Aus Abb. 3 ist ersicht-

* Persönliche Mitteilung von Prof. E. SCHOPPER, Frankfurt a. M.

lich, daß die gemessenen σ -Werte sich hinreichend annähern lassen durch

$$\sigma_{n,p}(E) = \text{const} \cdot \begin{cases} 0 & \text{für } 0 \leq E < 2,3 \text{ MeV,} \\ (E - 2,3)^2 & \text{für } 2,3 \leq E < 7,8 \text{ MeV,} \\ 30 & \text{für } 7,8 \leq E < \infty \text{ MeV,} \end{cases} \quad (18)$$

bzw.

$$\sigma_{n,\alpha}(E) = \text{const} \cdot \begin{cases} 0 & \text{für } 0 \leq E < 6 \text{ MeV,} \\ (E - 6)^2 & \text{für } 6 \leq E < 10,5 \text{ MeV,} \\ 20 & \text{für } 10,5 \leq E < \infty \text{ MeV.} \end{cases}$$

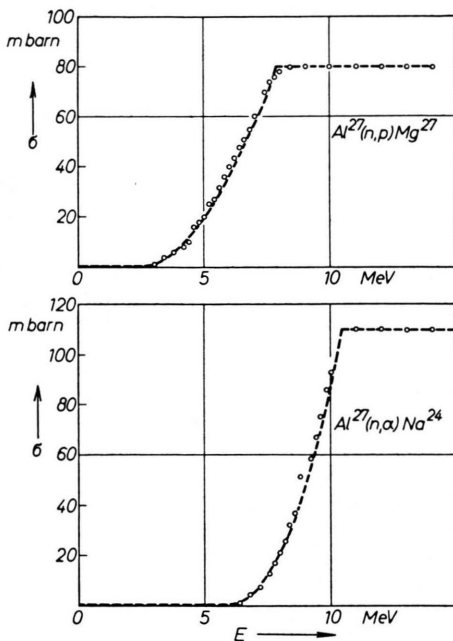


Abb. 3. Wirkungsquerschnitte für die (n, p)- und (n, α)-Reaktion des Aluminiums (nach UTHE⁷); gestrichelt eingetragen die in dem Bericht verwendeten analytischen Näherungen Gl. (18).

Durch Einsetzen der Funktionen (15) bzw. (16) sowie (17) und (18) in Gl. (9) und Ausrechnen der beiden Integrale erhält man die Ergebnisse

$$\varepsilon_R(\text{Mg-27}) = \frac{1}{4} \frac{F}{V} \cdot 0,194 a_{\text{Mg}}, \quad (19)$$

bzw.

$$\varepsilon_R(\text{Na-24}) = \frac{1}{4} \frac{F}{V} \cdot 0,139 a_{\text{Na}}.$$

Die noch verbleibenden unbekannten Größen a_{Mg} bzw. a_{Na} stellen nach Gl. (14) die Mg- bzw. Na-Reichweiten für eine Energie von 1 MeV dar. Sie sind einer theoretischen Bestimmung nicht zugänglich, können aber nunmehr durch eine experimentelle Messung der Austrittswahrscheinlichkeiten aus Gl. (19) ermittelt werden[†].

Dem Sektor Mathematik des Instituts, insbesondere den Herren Dr.-Ing. W. EGLOFF und W. KUZENKO, danken wir bestens für die Berechnung der Integrale von Gl. (9) auf dem Siemens-Digitalrechner S 2002.

⁷ P. M. UTHE, USA FIT-TR-57-3, p. 69 [1957].

[†] Die Resultate derartiger Messungen von D. ERTEL werden demnächst veröffentlicht.