

Über eine Methode zur Bestimmung der Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnittes der Reaktion $^{16}\text{O}(\text{t}, \text{n})^{18}\text{F}$

Von KNUST LORENZEN und DIETER KÖNIG

Aus dem Institut für Radiochemie und dem Institut für Technische Physik
der Technischen Hochschule München

(Z. Naturforschg. **16 a**, 933—936 [1961]; eingegangen am 4. Mai 1961)

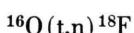
Herrn Prof. Dr. N. RIEHL zum 60. Geburtstag gewidmet

Der Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{16}\text{O}(\text{t}, \text{n})^{18}\text{F}$, die zur aktivierungsanalytischen Bestimmung von Sauerstoff benutzt wird, wurde in Abhängigkeit von der Energie der Tritonen nach einer Reichweite-Methode bestimmt.

Die erhaltenen Werte konnten mit Wirkungsquerschnitten, die von JARMIE mit einem Tritonenbeschleuniger gemessen wurden, verglichen werden.

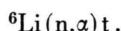
Es ergibt sich ein ähnlicher Verlauf der Energieabhängigkeit wie der von JARMIE angegebene. Die absoluten Größen der Wirkungsquerschnitte liegen z. Tl. bei etwas höheren Werten.

Im Verlauf von Arbeiten über die aktivierungsanalytische Bestimmung von Sauerstoff in Festkörpern¹ ergab sich bei Versuchen über die Unterscheidbarkeit zwischen oberflächlich adsorbiertem und homogen verteilt Sauerstoff die Möglichkeit, den Wirkungsquerschnitt der Reaktion



in Abhängigkeit von der Energie der die Reaktion auslösenden Tritonen auf eine neuartige Weise zu bestimmen.

Die Tritonen wurden in bekannter Weise² aus ^{6}Li durch Neutronenbestrahlung im Reaktor erzeugt



Die Energie der so erzeugten Tritonen beträgt 2,74 MeV. Der für die Aktivierungsanalyse von Sauerstoff interessierende Energiedurchgang der Tritonen reicht demnach von 2,74 MeV bis zur Grenzenergie, unterhalb derer keine Reaktion mehr stattfindet.

Die von JARMIE³ mit Hilfe eines Tritonenbeschleunigers gemessenen Wirkungsquerschnitte lagen bei Tritonenenergien von 2,13 MeV bis 0,68 MeV.

Von SHER und FLOYD⁴ stammt eine rohe Bestimmung des Wirkungsquerschnittes für 2,7 MeV-Tritonen.

Die nach der hier angewandten Reichweitemethode erhaltenen Wirkungsquerschnitte liegen bei Tritonenenergien zwischen 2,3 und 0,3 MeV.

Theorie

Die aus ^{6}Li erzeugten Tritonen von 2,74 MeV besitzen eine ihrer Energie entsprechende, endliche Reichweite, d. h. das Triton befindet sich später an einem Ort, der um die Reichweite von seinem Entstehungsort entfernt ist.

Die Reichweite von Tritonen in Festkörpern in Abhängigkeit von der Energie lässt sich berechnen:

Experimentell bekannt ist die Reichweite von Protonen in Luft in Abhängigkeit von ihrer Energie⁵. Hieraus erhält man die Reichweite von Tritonen in Luft⁶. Aus der für Luft bekannten Reichweite lässt sich nach der Beziehung von BRAGG-KLEEMAN⁶

$$R_{\text{fest}} = R_{\text{Luft}} \cdot 3,2 \cdot 10^{-4} \sqrt{A/d}$$

die Reichweite in Festkörpern errednen. Hierbei bedeuten R = Reichweite, A = Atomgewicht, d = Dichte.

Der Wirkungsquerschnitt für die Reaktion mit Sauerstoff in Abhängigkeit von der Energie der Tritonen lässt sich berechnen, wenn man bei bekannter Anzahl von Tritonen und bekanntem Sauerstoff-

¹ Zusammenfassender Artikel s. H. J. BORN u. N. RIEHL, Angew. Chem. **72**, 559 [1960].

² A. A. SMALES u. R. G. OSMOND, Anal. Chim. Acta **10**, 117 [1954].

³ N. JARMIE, Phys. Rev. **98**, 41 [1955].

⁴ R. SHER u. J. J. FLOYD, Phys. Rev. **102**, 242 [1956]; bei die-

ser Relativ-Methode, die ebenfalls auf der endlichen Reichweite der Tritonen beruht, wurde die Winkelabhängigkeit — isotrope Aussendung der Tritonen — nicht berücksichtigt.

⁵ H. BETHE, BNL-T-7 [1949].

⁶ R. D. EVANS, The Atomic Nucleus, London 1955.



gehalt des betreffenden Festkörpers die Anzahl der entstandenen ^{18}F -Atome in Abhängigkeit von der Entfernung vom Entstehungsort der Tritonen experimentell bestimmen kann. Der zu diesem Zweck gewählte Versuchsaufbau ist in Abb. 1 beschrieben.

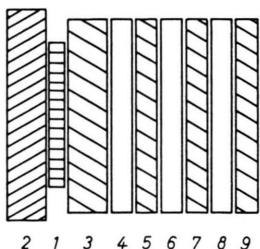


Abb. 1. Aufbau der Proben. Als Lithium-Quelle 1 dient eine hinreichend dünne Schicht ^6LiF von $1,9 \mu$ Dicke und 1 cm^2 Fläche, die auf eine Aluminiumfolie 2 sedimentiert wurde. Die Polystyrolfolie 3 dient als Sicherheitsschicht und die Formvarfolien 4, 6, 8, ... und die sauerstofffreien Polystyrolfolien 5, 7, 9, ..., deren Dicken bekannt sind, als Meßfolien. Durch die kinetische Energie der Tritonen erleiden die ^{18}F -Atome Verlagerungen, so daß die Polystyrolfolien als Fängerfolien für die jeweils vorherige Formvarfolie dient. Formvar ist Polyvinylformal und enthält 32 Gew.-% O_2 .

Da die Tritonen isotrop von der Lithiumquelle ausgesandt werden, muß die Energie – Winkel-Verteilung bei der quantitativen Rechnung berücksichtigt werden. Dies zeigt Abb. 2.

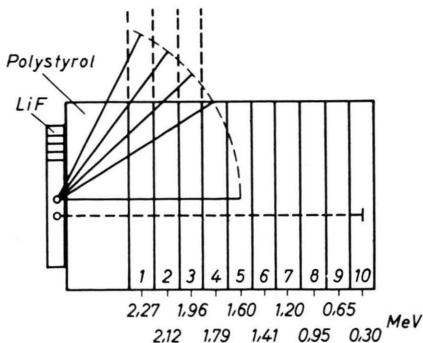


Abb. 2. Energie – Winkel-Verteilung in den Einzelschichten. Zur Rechnung wird die Gesamtschicht in die Einzelschichten 1 – 10 aufgeteilt. Diesen Einzelschichten entsprechen bei senkrechtem Flug der Tritonen bestimmte Energieintervalle. Wegen der isotropen Tritonenaussendung werden die Einzelschichten jedoch von Tritonen verschiedener Energie durchflogen. Lediglich die Schicht 10 wird nur von Tritonen des Energieintervalls 0,30 MeV erreicht (gestrichelte Linie). Ferner ist für die Schicht 5 die Verteilung für Tritonen des gleichen Energieintervalls E_5 in den Schichten 1 bis 4 eingezeichnet. Da die Reichweite der Tritonen in Formvar maximal 41μ beträgt, die Fläche der Folien aber 1 cm^2 beträgt, tritt ein Herausfliegen der Tritonen nur am Rand der Folien auf und fällt nicht ins Gewicht. Durch die Streckung der Abszisse in der Zeichnung ist die gezeichnete Flugstrecke der Tritonen entsprechend verlängert.

Für die Rechnung war es zweckmäßig, die Gesamtschicht, in welcher die Tritonen mit dem Sauerstoff zu ^{18}F reagieren, in 10 Schichten gleicher Dicke aufzuteilen, denen nach der Energie-Reichweitebeziehung 10 Energieintervalle entsprechen. Die Mittelwerte \bar{E} dieser Energieintervalle lagen zwischen 2,27 und 0,30 MeV. Zu jeder dieser 10 Schichten wurden die Raumwinkel, die zu den einzelnen in der Schicht vorkommenden Energieintervallen gehören, grafisch ermittelt. Da in der am weitesten von der Lithiumschicht entfernten Schicht 10 nur Tritonen mit $\bar{E}_{10} = 0,30 \text{ MeV}$ vorkommen und der Raumwinkel bekannt ist, kann der zu diesem Energieintervall gehörende Wirkungsquerschnitt $\sigma_{0,30}$ unmittelbar ausgerechnet werden. In der Schicht 9, in der Tritonen mit $\bar{E} = 0,65$ und $\bar{E} = 0,30$ ^{18}F erzeugen, kann $\sigma_{0,65}$ jetzt ebenfalls berechnet werden, da ja $\sigma_{0,30}$ bereits bekannt ist.

Da jede Schicht einen Wirkungsquerschnitt für ein neues Energieintervall liefert, kann man so 10 Wirkungsquerschnitte berechnen.

Der mit Hilfe eines Co-Vergleichstandards ermittelte Neutronenfluß des Reaktors liefert zusammen mit dem bekannten Gewicht der Li-Quelle den Tritonenfluß, so daß eine Absolutbestimmung der Wirkungsquerschnitte möglich ist.

Versuche

Die Versuche wurden mit Lithiumfluorid durchgeführt, das zu 96% mit ^6Li angereichert war. Hierdurch wurde die Tritonenausbeute wesentlich erhöht. Natürliches Lithium enthält nur 7,4% ^6Li . Eine Sauerstoffverunreinigung mußte nicht berücksichtigt werden, da das LiF nach dem Versuch von den eigentlichen Meßfolien zusammen mit der zur Sicherheit vorgelagerten Polystyrolfolie entfernt wurde. Dieselbe Folie schaltete auch alle möglichen Fehler durch Rückstoß- ^{18}F -Atome aus, die mit schnellen Neutronen nach der Reaktion $^{19}\text{F}(n,2n)^{18}\text{F}$ entstehen.

Als sauerstoffhaltige Substanz für die Meßfolien wurde Formvar (=Polyvinylformal) verwendet. Die nur wenige μ dicken Folien wurden aus einer Lösung in Benzylalkohol durch Eindunsten auf Photoplatte hergestellt. Die Dicken der Folien wurden durch Wägung bestimmt.

Die sauerstofffreien Zwischenfolien wurden aus Polystyrol in Benzol gelöst hergestellt. Die Zwischenfolien erwiesen sich als notwendig, da die gebildeten ^{18}F -Atome Verlagerungen bis 1μ erleiden.

Als Bindemittel für das auf Aluminiumfolien als Träger sedimentierte ^6LiF wurde 1% Polystyrol (bezogen auf ^6LiF) zugegeben. Die Sedimentation erfolgte

aus benzolischer Lösung, das Lösungsmittel wurde anschließend eingedunstet.

Um eine Trennung der sehr dünnen Folien nach der Bestrahlung zu ermöglichen, wurden die Folien mit Papierfahnen, die mit sehr wenig Vaseline angeklebt wurden, versehen. Die Trennung der Folien mit Hilfe der Papierfahnen mußte trotzdem sehr vorsichtig erfolgen, da vor allem die Formvarfolien nach der Bestrahlung sehr brüchig waren.

Durch dieses Brüchigwerden der Folien wurde die Bestrahlungszeit bei einem Fluß von 10^{13} Neutronen/ $\text{cm}^2 \times \text{sec}$ auf 5 min begrenzt.

Die Verpackung der Proben erfolgte in Polyäthylenbeuteln gemäß den Vorschriften am FRM. Durch diese Verpackungsart wurde außerdem ein ausreichender Zusammenhalt des Folienpaketes gewährleistet.

Der zur quantitativen Auswertung notwendige thermische Neutronenfluß wurde mit Hilfe eines gleichzeitig bestrahlten Co-Präparates von bekanntem Co-Gehalt und eines geeichten Co-Standards bestimmt.

Durch die Bestrahlung im Reaktor entstehen neben dem ^{18}F noch andere Aktivitäten, die von Verunreinigungen des Folienmaterials herrühren. Daher war eine chemische Aufarbeitung unumgänglich. Die hauptsächlichen Verunreinigungen waren im Formvar Na und im Polystyrol Na + Ba. Wegen der Halbwertszeit des ^{18}F von 112 min erfolgte die Abtrennung der störenden Verunreinigungs-Aktivitäten in einem Kationenaustauscher. Hierzu wurden die einzelnen Folien getrennt gelöst, die Formvarfolien nach Zugabe von einer bekannten Menge KF in konz. HCl in Polyäthylenreagenzgläsern, die Polystyrolfolien nach Zugaben von KF und BaCl_2 in einer Mischung von 15 cm³ Aceton + 5 cm³ Essigester + 5 cm³ Wasser. Die Formvarlösung wurde vor der Aufgabe auf den Ionenaustauscher mit NH₃ neutralisiert, die Polystyrollösung eingedampft und mit Wasser aufgenommen. Das Filtrat des Ionenaustauschers wurde neutralisiert, das Fluorid als PbClF ausgefällt, filtriert und in einem γ -Szintillationszähler die Aktivität bestimmt. Nach beendeter Aktivitätsmessung wurde der Anteil an ausgefälltem = gemessenem Fluorid titrimetrisch nach VOLHARD bestimmt.

Der Abfall der Aktivität wurde jeweils über 15 Halbwertszeiten verfolgt, um eventuelle, nicht restlos entfernte Störaktivitäten erfassen und berücksichtigen zu können.

Versuchsergebnisse

Die experimentell erhaltene Kurve in Abb. 3 gibt die Anzahl der Zerfälle/min $\cdot \mu$ gegen die Entfernung von der Lithiumfluoridfolie aufgetragen wieder. Aus dieser Kurve kann durch Integration die Gesamtzahl der Zerfälle/min für die zur Rechnung notwendigen Einzelschichten erhalten werden (Abb. 2).

Da lediglich in der Schicht 10 nur ein Energieintervall vorkommt, wird zunächst für diese Schicht

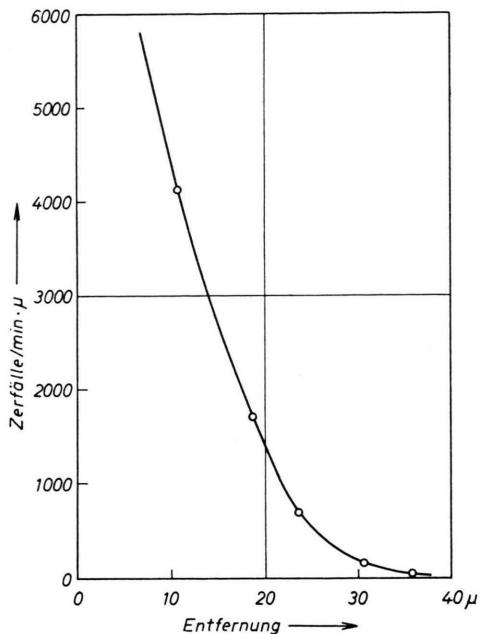


Abb. 3. Abhängigkeit der gemessenen Aktivität von der Entfernung der Formvarfolien von der Lithiumschicht. Die in den einzelnen Folien der bestrahlten Probe ermittelten Aktivitäten wurden nach allen notwendigen Umrechnungen (Analysenfaktoren, Zeit bis zur Aktivitätsmessung, Meßgerätefaktoren usw.) auf 1 μ Folienstärke umgerechnet und gegen die Entfernung des Mittelpunktes der Folie vom Mittelpunkt der Lithiumfluoridschicht aufgetragen. Diesen Abständen entsprechen bei senkrechtem Flug der Tritonen aus der Lithiumfluoridschicht definierte Energien, s. Abb. 2.

der Wirkungsquerschnitt berechnet. Nach Umrechnung der Zerfälle/min in Anzahl der Zerfälle, Berücksichtigung der Zählgeräteeffektivität und des Neutronenflusses, der zu $5,6 \cdot 10^{12}$ Neutronen/ $\text{cm}^2 \text{ sec}$ bestimmt wurde, ergibt sich

$$\sigma_{0,30} = 5,5 \text{ mb}.$$

Die übrigen Wirkungsquerschnitte sind graphisch in Abb. 4 aufgetragen. Zum Vergleich ist die von JARMIE (J) bestimmte Kurve gesondert gezeichnet.

Diskussion

Vergleicht man die beiden Kurven, so ergibt sich, daß vor allem bei niedrigen Energien nach der hier angeführten Methode höhere Werte für den differentiellen Wirkungsquerschnitt erhalten werden. Die Bestimmung der niederenergetischen Wirkungsquerschnitte ist jedoch, wie aus Abb. 3 ersichtlich, nicht

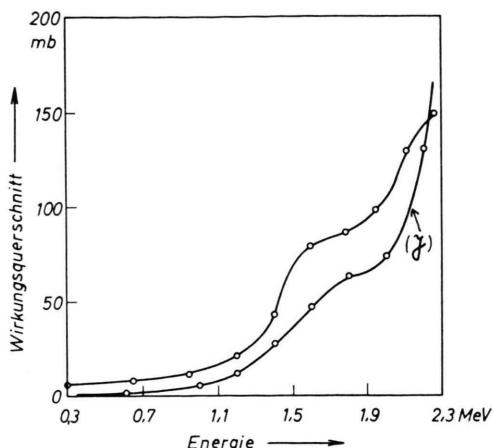


Abb. 4. Wirkungsquerschnitt — Energie — Kurve. Es sind die Wirkungsquerschnitte in mb gegen die Energie der Tritonen in MeV aufgetragen. Die von JARMIE³ angegebene Kurve (J) ist zum Vergleich eingetragen.

sehr genau, da bei der geringen gemessenen Aktivitätsrate ein größerer Fehler unvermeidbar ist.

Die Fehlerfortpflanzung durch diese ungenauen Werte auf die höherenergetischen Wirkungsquerschnitte ist wegen der dort größeren Werte der Wirkungsquerschnitte gering.

Der bei JARMIE bei etwa 1,8 MeV liegende Knick in der Wirkungsquerschnittskurve ist nach 1,6 MeV verschoben.

Unter Berücksichtigung der zwangsläufigen Fehlermöglichkeiten dieser Methode ist die Übereinstimmung der beiden Kurven sowohl im Verlauf wie auch in den Werten der Wirkungsquerschnitte befriedigend.

Herrn Prof. Dr. N. RIEHL und Herrn Prof. Dr. H. J. BORN danken wir für die Anregung und die Unterstützung dieser Arbeit.

Die Bestimmung der spektralen Verteilung der epithermischen und schnellen Neutronen für den Kern eines Schwimmbadreaktors

Von W. KÖHLER

Aus dem Laboratorium für Technische Physik der Technischen Hochschule München
(Z. Naturforsch. 16 a, 936—945 [1961]; eingegangen am 10. Mai 1961)

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

Für den Kern eines leichtwassermoderierten Reaktors wurde die energetische Verteilung der epithermischen und schnellen Neutronen berechnet und für eine Position zwischen den Brennstoffplatten und in einem zentralen Bestrahlungskanal mit Aktivierungsdetektoren gemessen.

Innerhalb der Fehlergrenzen stimmen die Messungen für eine Position zwischen den Brennstoffplatten nahe der Mitte des Kerns mit dem berechneten Verlauf überein.

1. Ziel der Untersuchungen

Das Problem der energetischen Verteilung der epithermischen und schnellen Neutronen ist für noch keinen Reaktor befriedigend gelöst.

Andererseits ist aber die Intensität und spektrale Verteilung der Neutronen mit Energien größer als etwa 100 eV für Festkörperuntersuchungen unbedingt erforderlich. Da der Wirkungsquerschnitt für die elastische Streuung der Neutronen gut bekannt ist, kann mit Hilfe der spektralen Flußverteilung das Spektrum der primär angestoßenen Kerne ermittelt werden. Daraus kann man dann quantitative Aussagen über die erzeugten FRENKEL-Defekte machen.

Für einen als homogen angenommenen Kern eines leichtwassermoderierten Reaktors wurde daher die energetische Verteilung der epithermischen und

schnellen Neutronen berechnet und mit Messungen nahe der Kernmitte verglichen.

2. Die Berechnung des epithermischen und schnellen Neutronenflußspektrums für einen leichtwassermoderierten Reaktor

Für die Berechnung der kritischen Masse und anderer nuklearer Größen von Schwimmbeckenreaktoren wird die hochangereicherte Spaltzone mit feiner Unterteilung des Brennstoffes als homogen betrachtet¹. Dieses Vorgehen wird dadurch gerechtfertigt, daß die Diffusionslänge der thermischen Neutronen groß gegen die „Gitterkonstante“ dieses Reaktortyps ist.

¹ H. GRÜMM u. F. PUTZ, Atomkernenergie 5, 309 [1960]; POTTER AERE INF/BIB 112.