

Abb. 4. Wirkungsquerschnitt — Energie — Kurve. Es sind die Wirkungsquerschnitte in mb gegen die Energie der Tritonen in MeV aufgetragen. Die von JARMIE<sup>3</sup> 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 Wirkungsquerschnittkurve 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 betrachtet<sup>1</sup>. Dieses Vorgehen wird dadurch gerechtfertigt, daß die Diffusionslänge der thermischen Neutronen groß gegen die „Gitterkonstante“ dieses Reaktortyps ist.

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



Die freie Weglänge der epithermischen und schnellen Neutronen ist ebenfalls groß gegen den Abstand der Brennstoffplatten, deshalb kann für die Berechnung eine gleichmäßige Verteilung des Brennstoffs und des Moderators angenommen werden.

Die Verteilung der Quellen der Spaltneutronen ist proportional dem thermischen Neutronenfluß. Für die Mitte unseres Reaktorkerns mit Graphit- bzw. Wasserreflektor ist die Ortsabhängigkeit des thermischen Neutronenflusses gering, sie wird in unserer Berechnung vernachlässigt.

Die bei der Spaltung frei werdenden Neutronen verlieren durch Stöße mit den Kernen des Moderators und anderer im Reaktor befindlichen Materialien allmählich ihre Energie oder werden durch  $(n,\gamma)$ -,  $(n,p)$ - oder  $(n,\alpha)$ -Reaktionen verbraucht. Im Gleichgewicht sind für ein unbegrenztes Streumedium mit homogener Quellenverteilung die Verluste durch Absorption und Streuung für jedes Energieintervall gleich dem Gewinn an Neutronen, die mit dieser Energie bei der Spaltung frei werden,  $N_S(E)$  oder von höheren Energien zu dieser Energie abgebremst werden.

Da die Moderation in erster Linie durch Stöße mit den Wasserstoffkernen erfolgt, läßt sich die Bremsgleichung exakt lösen<sup>2</sup>. Der Neutronenfluß pro Energieintervall ergibt sich zu

$$\Phi'(E) = \frac{1}{\Sigma_a(E) + \Sigma_s(E)} \left\{ \frac{1}{E} \int_E^\infty N_S(E') dE' + N_S(E) \right\},$$

$N_S(E)$  = Anzahl der entstehenden Spaltneutronen pro Energieintervall,

$\Sigma_a(E)$  = makroskopischer Absorptionsquerschnitt,

$\Sigma_s(E)$  = makroskopischer Streuquerschnitt.

Der makroskopische Streu- und Absorptionsquerschnitt wurde aus den Wirkungsquerschnitten aller im Reaktor befindlichen Stoffe gemäß deren Volumenanteil ermittelt.

Der Verlauf des Wirkungsquerschnittes und die volumenmäßigen Anteile der einzelnen Komponenten sind in Abb. 1 aufgetragen (Verhältnis Wasser zu Aluminium 0,45).

Da der Absorptionsquerschnitt des Wasserstoffs bei diesen Energien sehr klein ist, kann der elastische Streuquerschnitt gleich dem totalen gesetzt werden. Die elastischen Streuungen an den anderen

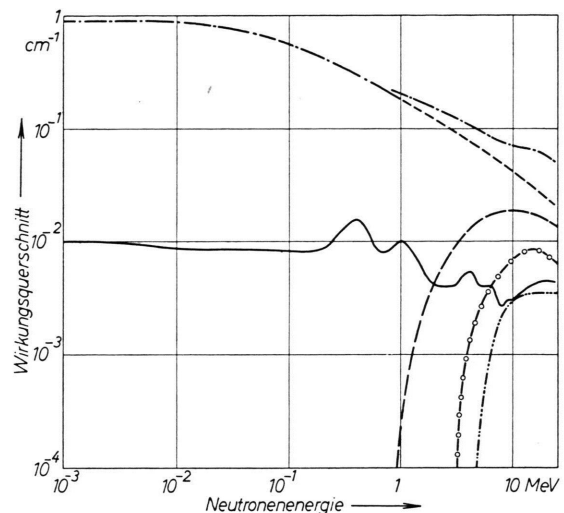


Abb. 1. Der Wirkungsquerschnitt des Reaktorkerns und die Anteile der einzelnen Komponenten. — — — —  $\Sigma_{\text{Reaktor}}$ , — — — —  $\Sigma_{\text{Wasserstoff}}$ , — · — · —  $\Sigma_{\text{Sauerstoff}}$ , — — — —  $\Sigma_{(n,p)\text{Al}}$ , — ○ — ○ —  $\Sigma_{(n,\alpha)\text{O}}$ , — · — · —  $\Sigma_{(n,n)\text{Al}}$ .

Komponenten können vernachlässigt werden, ebenso die Anisotropie der Streuung an den Sauerstoffkernen. Die Sauerstoffresonanzen wurden nicht berücksichtigt. Sie ergeben eine Flußsenke an der Stelle der Resonanz, verändern aber den Verlauf des Neutronenflusses nicht.

Da in Gl. (1) nur die Summe aller Wirkungsquerschnitte eingeht, kann die unelastische Streuung an den Aluminiumkernen wie Absorption gerechnet werden. Die unelastische Streuung an Uran wird wegen des geringen Volumenanteils von Uran vernachlässigt. Für die inelastische Streuung ändert sich der Integralkern in der Bremsgleichung.  $g(E', E)$  ist nicht mehr unabhängig von der Neutronenenergie  $E'$ . Für eine erste Information über den Verlauf des Neutronenflusses wurde der Unterschied der Integralkerne vernachlässigt.

Die  $(n,p)$ - und  $(n,\alpha)$ -Reaktionen an Aluminium und Sauerstoff werden als Absorption behandelt.

Unterhalb 0,6 MeV ist allein der Wirkungsquerschnitt des Wasserstoffs maßgebend, unter 0,01 MeV ist dieser konstant.

Die Wirkungsquerschnitte wurden den Neutron Cross Sections entnommen<sup>3</sup>. Mit diesem Wirkungsquerschnitt für den Reaktorkern wurde der spektrale

<sup>2</sup> K. WIRTZ u. K. H. BECKURTS, Elementare Neutronenphysik, Springer-Verlag, Berlin 1958. — S. GLASTONE u. M. C. EDLUND, The Elements of Nuclear Reactor Theory, Macmillan & Co. Ltd., London 1953.

<sup>3</sup> I. J. HUGHES u. R. B. SCHWARTZ, Neutron Cross Sections BNL 325 [1959].

Verlauf für die Quellstärke  $\int_0^\infty N_s(E) dE = 1$  errechnet. Der Einfluß des Wirkungsquerschnittes auf den spektralen Verlauf ist in Abb. 2 dargestellt. Bei höheren Neutronenenergien ist ein kleinerer Einfluß der noch neben dem Wasserstoff vorhandenen Komponenten bemerkbar.

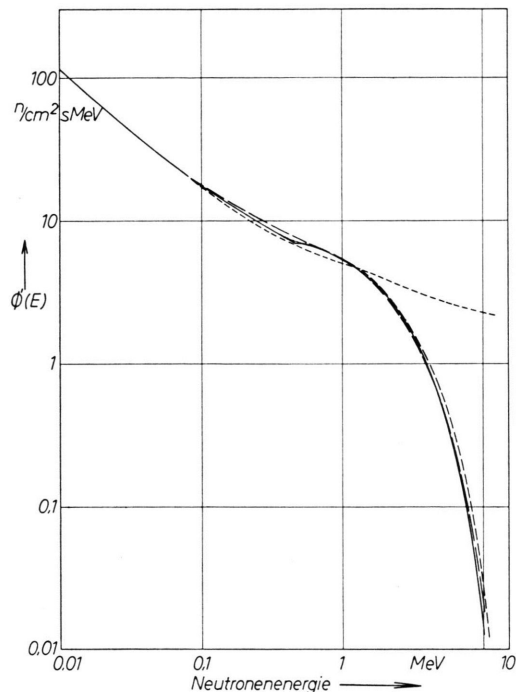


Abb. 2. Der berechnete differentielle Neutronenfluß in Abhängigkeit vom Wirkungsquerschnitt. — — —  $1/E \Sigma_H$ , — — —  $F(E)/\Sigma_H$ , — — —  $F(E)/\Sigma_H + \Sigma_{Al}$ , — — —  $F(E)/\Sigma_{Reaktor}$ .

Nur 1% der Spaltneutronen entstehen mit einer Energie kleiner als 100 keV. Darum ist  $N_s(E)$  für Energien kleiner als 100 keV praktisch gleich Null und

$$\Phi'(E) = \frac{q}{(\Sigma_s + \Sigma_a)E} \quad \text{mit} \quad q = \int_0^\infty N_s(E) dE. \quad (2)$$

Unterhalb 4 keV ist der Streuquerschnitt des Wassers konstant und die Absorption sehr gering, somit  $\Phi'(E)$  proportional zu  $1/E \Sigma_s$ :

$$\Phi'(E) dE = \frac{q}{\Sigma_s} \frac{dE}{E} = \Phi_{\text{res}} \frac{dE}{E} \quad (3)$$

$$\Phi_{\text{res}} = \int_E^{eE} \Phi'(E) dE = \text{Neutronenfluß pro logarithmisches Einheitsintervall,}$$

$e$  = Basis des natürlichen Logarithmus.

Bei starker Absorption in diesem Gebiet (Resonanzeinfang) kann  $\Sigma_a$  nicht vernachlässigt werden. Das Flußspektrum weicht vom  $1/E$ -Verlauf ab, die Bremsdichte  $q$  ist energieabhängig. — Für schwere Moderatoren ist die Berechnung der spektralen Verteilung der schnellen Neutronen wesentlich schwieriger. Die Gleichung für die Stoßdichte  $F(E)$  kann nicht auf eine Differentialgleichung zurückgeführt werden. Für eine monoenergetische Quelle und fehlende Absorption hat PLACZEK<sup>4</sup> die strenge Lösung angegeben. Für Energien, die klein gegen die Quellenergie sind, ergibt sich als asymptotische Lösung:

$$\Phi'(E) dE = \frac{q}{\xi \Sigma_s} \frac{dE}{E} = \Phi_{\text{res}} \frac{dE}{E}. \quad (5)$$

In diesem Bereich stellt sich auch in einem schweren Medium, falls die Absorption vernachlässigt werden kann, eine  $1/E$ -Verteilung des Neutronenflusses ein. Aus den Gln. (3) und (5) ergibt sich, daß bei vorgegebener Quellstärke der Resonanzfluß pro logarithmisches Energieintervall  $\Phi_{\text{res}}$  in einem Medium mit kleinem Bremsvermögen  $\xi \Sigma_s$  größer ist als in einem Medium mit großem  $\xi \Sigma_s$ . Im Graphit ist  $\Phi_{\text{res}}$  20-mal größer als im Wasser.

### 3. Meßmethode

Zur Überprüfung des berechneten Verlaufs wurden Messungen mit Detektoren durchgeführt, die durch Neutronen verschiedener Energie bevorzugt aktiviert werden.

Bekanntlich gibt es keine Detektoren für schnelle Neutronen, die nur auf Neutronen zwischen einer Energie  $E_1$  und einer Energie  $E_2$  ansprechen.

Die Sättigungsaktivität eines Detektors ergibt sich aus dem Neutronenfluß pro Energieintervall am Bestrahlungsort  $\Phi'(E)$  und dem energieabhängigen Wirkungsquerschnitt  $\sigma(E)$  für eine bestimmte Reaktion dieses Detektors zu:

$$A_i = N_i \int_0^\infty \Phi'(E) \sigma(E) dE, \quad (6)$$

wobei  $N_i$  die Anzahl der Kerne des Detektorisotops  $i$  ist.

Für die Messung des schnellen Neutronenflusses (Neutronenenergie größer als 0,1 MeV) dienen die sogenannten Schwellwertsreaktionen, also (n,p)-, (n, $\alpha$ )- oder (n,2n)-Reaktionen, die erst bei einer bestimmten Neutronenenergie einsetzen. Die untere Grenze des Aktivierungsintegrals wird somit diese

<sup>4</sup> G. PLACZEK, Phys. Rev. **69**, 423 [1946].

Schwellwertsenergie. Um aus diesem Aktivierungsintegral eine Aussage über den Verlauf des Neutronenflusses machen zu können, haben wir den Verlauf des Wirkungsquerschnittes durch eine Stufenfunktion ersetzt. Dies ist bei vielen Reaktionen dieses Typs vertretbar, da der Wirkungsquerschnitt mit wachsender Energie der Neutronen rasch ansteigt, einen mehr oder weniger konstanten Wert  $\sigma_0$  erreicht und erst bei Neutronenenergien wieder abfällt, die in einem Reaktor nicht erreicht werden.

Beim Ersetzen des Wirkungsquerschnittes durch eine Stufenfunktion darf sich die Sättigungsaktivität nicht ändern. Daraus ergibt sich, daß von den zwei Parametern einer Stufenfunktion (Lage und Höhe) einer frei wählbar ist und der andere mit der getroffenen Wahl festgelegt wird. Da der Wert von  $\sigma_0$  eine meßbare Größe ist, haben wir die Höhe der Stufe als Parameter gewählt und die Lage der Stufe aus der Bedingung der Gleichheit der Sättigungsaktivitäten bestimmt. Diese effektive Schwellwertsenergie wurde graphisch ermittelt, wobei die in der Literatur angegebenen  $\sigma(E)$ -Kurven und der berechnete differentielle Neutronenfluß zugrunde gelegt wurden.

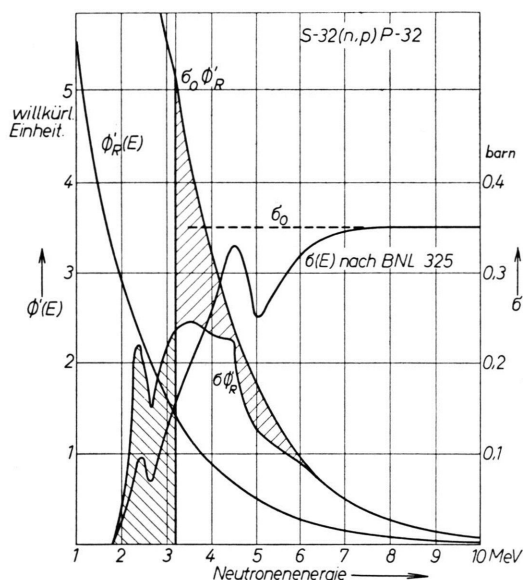


Abb. 3. Die Bestimmung der effektiven Schwellwertsenergie.

$$E_{\text{eff}} = 3,2 \text{ MeV}, \quad \sigma_0 = 0,35 \text{ barn},$$

$$\int_{E_{\text{eff}}}^{\infty} \sigma(E) \Phi'(E) dE = \sigma_0 \int_{E_s}^{\infty} \Phi'(E) dE.$$

<sup>5</sup> J. B. TRICE, CF-55-10-140.

<sup>6</sup> P. M. UTHE, WADC-TR-57-3.

Reaktion	$P^{31}(n, p)Si^{31}$	$S^{32}(n, p)P^{32}$	$Al^{27}(n, \alpha)Na^{24}$
Halbwertszeit des entstehenden Isotops ( $T_{1/2}$ )	2,62 h	14,3 d	14,9 h
Schwellwertsenergie $E_s$	0,72	0,95	3,27 MeV
Sättigungswirkungsquerschnitt	0,140	0,350	0,113 barn
Literatur für $\sigma(E)$	a	b	a
Effektive Schwellwertsenergie für das berechnete Spektrum	2,9	3,2	8,1 MeV
Sättigungswirkungsquerschnitt nach <sup>9</sup>	0,145	0,350	0,115 barn
Effektivische Schwellwertsenergie für das berechnete Spektrum; Verlauf des Wirkungsquerschnittes nach <sup>9</sup>	3,1	3,0	8,15 MeV
Effektive Schwellwertsenergie für ein Spaltspektrum bei gleichem Sättigungsquerschnitt	3,1	3,3	8,2 MeV
Für ein Spaltspektrum werden in der Literatur folgende Werte angegeben:			
TRICE <sup>5</sup>	$E_{\text{eff}}$ 2,4 $\sigma_{\text{eff}}$ 0,075	2,9 0,300	8,1 MeV 0,111 barn
UTHE <sup>6</sup>	$E_{\text{eff}}$ 2,5 $\sigma_{\text{eff}}$ 0,075	2,9 0,300	8,6 MeV 0,110 barn
GLOVER <sup>7</sup>	$E_{\text{eff}}$ 3,5 $\sigma_{\text{eff}}$ 0,203	3,5 0,441	8,7 MeV 0,183 barn
DIETRICH <sup>8</sup>	$E_{\text{eff}}$ 3,1 $\sigma_{\text{eff}}$ 0,141	3,3 0,354	8,2 MeV 0,113 barn

a J. A. GRUNDEL, R. L. HENKEL u. R. J. PERKINS, Phys. Rev. **109**, 428 [1958].

b L. ALLEN, BIGGERS, R. J. PRESTWOOD u. P. K. SMITH, Phys. Rev. **107**, 1369 [1957]. — E. D. KLEMA u. A. O. HANSEN, Phys. Rev. **77**, 787 [1950]. — P. HUBER u. T. HÜRLIMANN, Helv. Phys. Acta **28**, 33 [1955].

Tab. 1. Detektoren für die Bestimmung des schnellen Neutronenflusses.

In Tab. 1 sind die Werte von  $\sigma_0$  und die nach unserer Methode berechneten effektiven Schwellwertsenergien für die von uns verwendeten Reaktionen angegeben. Ferner sind die Werte von  $E_{\text{eff}}$  bei gleichem  $\sigma_0$  für ein Spaltspektrum und die Werte von TRICE<sup>5</sup>, UTHE<sup>6</sup>, GLOVER<sup>7</sup> und DIETRICH<sup>8</sup> ein-

<sup>7</sup> R. N. GLOVER, AERE R/R 2687.

<sup>8</sup> O. W. DIETRICH, Symposium in Risö, Dänemark, Juni 1960.



getragen, wobei die Höhe der Stufe als  $\sigma_{\text{eff}}$  bezeichnet ist. Die Werte von TRICE und UTHE für Schwefel und Phosphor sind nicht mehr gültig, da inzwischen neue Messungen von  $\sigma(E)$  vorliegen.

Die Berechnung von  $E_{\text{eff}}$  wurde auch für die von BEAUGE<sup>9</sup> vorgeschlagenen, gemittelten Werte von  $\sigma(E)$  vorgenommen.

Diese Schwellwertsdetektoren eignen sich nur zur Messung des schnellen Neutronenflusses. Die Bestimmung des Resonanzflusses erfolgte mit Gold-, Mangan- und Chlor-Sonden, die zur Verhinderung einer Aktivierung durch thermische Neutronen mit Kadmium bedeckt waren. Die Folien werden somit nur durch epithermische Neutronen aktiviert. In diesem Energiebereich liegen die Resonanzstellen für die  $(n, \gamma)$ -Reaktionen (Tab. 2).

Reaktion	Au <sup>197</sup> (n, $\gamma$ ) Au <sup>198</sup>	Mn <sup>55</sup> (n, $\gamma$ ) Mn <sup>56</sup>	Cl <sup>37</sup> (n, $\gamma$ ) Cl <sup>38</sup>
Halbwertszeit des entstehenden Isotops	2,697±0,003 d	154,5±0,1 m	37,5 m
Resonanzaktivierungsintegral	1558±62	11,7±1,25	0,348 barn
Berechneter 1/v-Anteil	42,2±0,11	5,92±0,09	0,32±0,07 barn
Energie der Hauptresonanz	4,9	337	26·10 <sup>3</sup> eV
Literatur	14	14	15, 2

Tab. 2. Resonanzdetektoren.

Bei Chlor ist der Beitrag der Resonanzstelle zum Resonanzintegral gering. Die Cl<sup>38</sup>-Aktivierung ist demnach nicht repräsentativ für den Neutronenfluß bei 26 keV.

Die Sättigungsaktivität dieser Detektoren ergibt sich, falls man von der Flußdepression der Neutronen innerhalb der Sonde in der Umgebung der Resonanzenergie absieht und eine 1/E-Verteilung des Neutronenflusses annimmt, zu

$$A_i = N_i \Phi_{\text{res}} \int_{0,4 \text{ eV}}^{\infty} \frac{\sigma(E)}{E} dE. \quad (7)$$

Das Integral wird als Resonanzaktivierungsintegral bezeichnet. Bei der Absolutmessung, die wir nur mit Gold durchführten, wurde die Flußdepression in der

Sonde nach der von SPRINGER<sup>10</sup> angegebenen Methode korrigiert.

Eine Abweichung vom 1/E-Verlauf ergibt sich bei Anwesenheit von Materialien mit starken Resonanzen wie U-238. Die Goldresonanz liegt unterhalb der niedrigsten Resonanzen von U<sup>238</sup>. Der gemessene Resonanzfluß ist bei einer Extrapolation über das Resonanzgebiet von U<sup>238</sup> hinaus, also über etwa 1 keV noch durch die Resonanzentkommwahrscheinlichkeit zu dividieren.

Die Resonanzentkommwahrscheinlichkeit  $p$  liegt für die Kernladung mit 90% U<sup>235</sup> sehr nahe bei 1. Laut Sicherheitsbericht war für die erste Kernladung mit auf 20% angereichertem Uran  $p = 0,944$ . Für die derzeitige Kernladung ergibt sich  $p$  zu 0,997.

Bei dieser Berechnung ist nur der Resonanzeinhang an U<sup>238</sup> berücksichtigt. Für U-235 sind keine Messungen über das effektive Resonanzintegral in Abhängigkeit vom Verhältnis Oberfläche/Gesamtanzahl veröffentlicht. Da das Resonanzintegral pro Atom von U<sup>238</sup> und U<sup>235</sup> und die Resonanzlinienbreiten die gleiche Größenordnung haben, wurde für eine Abschätzung angenommen, daß auch das effektive Resonanzintegral die gleiche Größenordnung hat. Für unsere Brennstoffplatte ist das effektive Resonanzintegral etwa die Hälfte des Resonanzintegrals des einzelnen Kerns. Die Abschätzung ergab eine Resonanzentkommwahrscheinlichkeit von 0,99.

Der mit Gold gemessene Wert ist demnach bei einer Extrapolation um 2% anzuheben.

#### 4. Meßstellen

Die bei der Berechnung angenommene Homogenität dürfte zwischen den Brennstoffplatten gewährleistet sein, deshalb wurde die Verteilung der Neutronen in einer derartigen Position (Element 62, Position 34) untersucht. Zum Vergleich wurden auch Messungen für die mittlere Position des Bestrahlungselementes (Spezialelement Nr. 48, Position 33) vorgenommen. Das Spezialelement besteht aus nur sechs Brennstoffplatten, während ein Normalelement zwölf hat. An Stelle der sechs Brennstoffplatten befindet sich ein wassergefüllter Kanal (rechteckiger Querschnitt mit abgerundeten Ecken: 60 × 28 mm<sup>2</sup>). Der Spalt zwischen den Brennstoff-

<sup>9</sup> R. BEAUGE, CEA-132 (O DEP/SEPP).

<sup>10</sup> H. HOHMANN, R. MISENTA, M. POLLERMANN, T. SPRINGER u. H. WALTER, Nukleonik 1, 149 [1958]. — W. MÄNNER u. T. SPRINGER, Nukleonik 1, 337 [1959].

platten ist nur 4 mm breit. Es konnten daher nur schmale Meßsonden auf einer Aluminiumhalterung eingeführt werden.

Mit diesen kleinen Meßsonden wurden nur Relativmessungen durchgeführt. Im Bestrahlungskanal können ohne Störung der Neutronenökonomie etwas größere Detektoren bestrahlt werden. Mit diesen wurden dann die Absolutbestimmungen durchgeführt.

## 5. Durchführung der Messungen

### 5.1. Relativmessung

Für den Vergleich Mitte Bestrahlungskanal – Mitte Normalelement wurde die Aktivität der Detektoren mit einem methandurchströmten Proportionalzählrohr für  $\beta$ -Teilchen bestimmt. Die Betriebsspannung des Endfensterzählrohrs lag bei 4,7 keV, die Plateaueneigung betrug 0,5%/100 V bei einer Länge von 400 Volt. Die Konstanz wurde mit einem Co 60-Präparat überwacht. Diese Zählrohre sind bezüglich Konstanz und Zuverlässigkeit den GEIGER-Zählrohren und Szintillationszählern überlegen<sup>11</sup>. Dies war für diese Versuche sehr wichtig, da für die einzelnen Detektoren zur Bestimmung der Reinheit oder Trennung von anderen Aktivitäten Abfallkurven aufgenommen werden mußten. Durch die (n, $\gamma$ )-Reaktion entsteht z. B. in der Phosphorsonde neben der Si<sup>31</sup>-Aktivität auch P<sup>32</sup>. Zur Trennung dieser beiden Aktivitäten wurde eine Zweikomponentenanalyse durchgeführt.

#### a) Aluminium

Das verwendete Aluminium hatte eine Reinheit von 99,999% und die kreisförmigen Sonden (1 cm<sup>2</sup>) eine Dicke von 0,1 mm. Die  $\beta$ -Abfallkurve zeigte die Halbwertszeit von Na<sup>24</sup> ( $14,9 \pm 0,1$  d). Das  $\gamma$ -Spektrum der aktivierten Al-Folie wurde an einem Einkanalimpulshöhenanalysator mit dem Spektrum einer mit thermischen Neutronen aktivierten NaF-Probe verglichen. Die Spektren waren identisch.

Ferner wurde die  $\beta$ -Absorptionskurve mit einem methandurchströmten Proportionalzählrohr aufgenommen. Die maximale  $\beta$ -Energie wurde zu 1,39

MeV bestimmt<sup>12a</sup> und die  $\gamma$ -Energie pro  $\beta$ -Zerfall zu 4,16 MeV.

Aus diesen Untersuchungen ergab sich, daß die Aktivität der Folie nur Na<sup>24</sup> ist. Die bei früheren Untersuchungen gefundenen Störaktivitäten<sup>12b</sup> sind auf das damalige Aktivierungs- und Meßverfahren zurückzuführen (Bestrahlungszeit 7 Stunden, über 100 Stunden Wartezeit).

Um zu vermeiden, daß Na<sup>24</sup> durch Aktivierung von bereits in oder an der Folie vorhandenem Na entsteht, wurden die verwendeten Folien vor der Bestrahlung mit Aceton gesäubert. Die thermische Aktivierung wurde durch Umhüllen mit Kadmium verhindert, die epithermische ist gering. Das Verhältnis der Aktivierung des Na<sup>23</sup> durch Resonanzneutronen zur Erzeugung von Na<sup>24</sup> durch schnelle Neutronen ergibt sich für eine Al-Folie mit einem Natriumgehalt von 1 ppm bei dem Flußverhältnis in der Kernmitte von  $\Phi_{\text{res}}/\Phi(E_n > 8,1 \text{ MeV})$  von etwa 10 zu  $2 \cdot 10^{-5}$  (Resonanzaktivierungsintegral = 0,23 barn<sup>13</sup>;  $\sigma_0 = 0,113$  barn [Tab. 1]).

Der Beitrag des Natriums zur Na<sup>24</sup>-Aktivität kann demnach vernachlässigt werden.

#### b) Schwefel

Die gegossenen Schwefelplättchen hatten eine Fläche von 1 cm<sup>2</sup> und ein Gewicht von 130 mg.

Außer der (n,p)-Reaktion für S<sup>32</sup> (95%) sind bei einer Bestrahlung noch folgende andere Reaktionen möglich (Tab. 3).

Die Aktivitäten von S<sup>37</sup> sowie Si<sup>31</sup> stören nicht, wenn die Messungen nach einer Abklingzeit von einem Tag durchgeführt werden. P<sup>33</sup> und S<sup>35</sup> haben eine weiche  $\beta$ -Strahlung (0,26 bzw. 0,167 MeV). Die Relativmessungen wurden deshalb mit 53 mg/cm dicken Al-Absorber zwischen Präparat und Zählrohr durchgeführt. Die weiche  $\beta$ -Strahlung wurde vollständig absorbiert.

#### c) Phosphor

Die Calciummetaphosphatscheiben waren 1 mm dick und 1 cm im Durchmesser.

Neben der (n,p)-Reaktion gibt es noch eine (n, $\gamma$ )- und eine (n, $\alpha$ )-Reaktion für P<sup>31</sup>. Die (n, $\gamma$ )-Reaktion

<sup>11</sup> H. MAIER-LEIBNITZ u. L. KOESTER, S.B. Heidelberger Akad. Wiss., 5. Abhandlung, Heidelberg 1951, S. 283.

<sup>12a</sup> L. KOESTER, Z. Naturforsch. 9 a, 104 [1954].

<sup>12b</sup> W. KÖHLER, Forschungsreaktor München-Bericht 30 [1960].

<sup>13</sup> G. WOLF, Nukleonik 2, 225 [1961]. — Y. DROULERS, CEA-Int/Pi/171–66 [1961].

<sup>14</sup> Genormte Werte von CEA zitiert in Minutes of the Second Meeting of the Working Group „Neutron Dosimetry“ Brüssel 13. 1. 1961.

<sup>15</sup> S. LICHTENBERGER, Phys. Rev. 72, 164 [1947].

Reaktion	Natürliche Häufigkeit des Ausgangsisotops %	Aktivierungsquerschnitt für die Neutronenenergie von 0,0252 eV mb	Aktivierungsquerschnitt für ein Spaltspektrum mb	Halbwertszeit des erzeugten Isotops
$S^{33}(n, p)P^{33}$	0,75	$15 \pm 10$	—	25 d
$S^{34}(n, \gamma)S^{35}$	4,2	$260 \pm 50$	—	87 d
$S^{36}(n, \gamma)S^{37}$	0,017	$140 \pm 40$	—	5 m
$S^{34}(n, \alpha)Si^{31}$	4,2	—	$3,0^{16}$	2,6 h
$S^{32}(n, p)P^{32}$	95,0	—	$63,3^{16}$	14,3 d

Tab. 3.

führt zu  $P^{32}$  und kann durch Umhüllen der Folie mit Kadmiun herabgesetzt werden. Die  $(n, \alpha)$ -Reaktion führt zu  $Al^{28}$  und stört wegen der kurzen Halbwertszeit (2,3 min) nicht, ebenso die  $(n, \gamma)$ -Reaktion des Calciums (Bildung von  $Ca^{49}$ ).

Die Trennung der  $P^{32}$ -Aktivität von der des  $Si^{31}$  erfolgte durch eine Zweikomponentenanalyse. [ $T_{1/2}(P^{32}) = 14,3$  d,  $T_{1/2}(Si^{31}) = 2,62$  Stunden.]

#### d) Gold

Es wurden die Folien verwendet, die am FRM<sup>17</sup> für die Messung des thermischen Neutronenflusses üblich sind. Sie haben eine Fläche von  $0,95 \text{ cm}^2$  und ein Gewicht von  $34,6 \pm 0,2$  mg.

Die Goldfolien hatten nach der Abfallmessung und dem  $\gamma$ -Spektrum keine anderen Aktivitäten.

#### e) Mangan

Als Meßsonden wurden Folien mit ungefähr  $1 \text{ cm}^2$  Oberfläche einer Mangan-Nickellegierung verwendet. Nach Angabe der Firma Johnson, Matthey u. Co. enthalten sie 11% Nickel und sind  $0,127 \pm 0,013$  mm dick.

Der Abfall der Manganaktivität erfolgte mit einer Halbwertszeit von 2,58 Stunden über 3–4 Zehnerpotenzen.

Die sehr geringe Restaktivität (etwa doppelter Nulleffekt) ist wahrscheinlich auf die Bildung von  $Co^{58}$  aus  $Ni^{58}$  zurückzuführen.

#### f) Chlor

Aus einer Polyvinylchloridfolie (etwa  $0,2 \text{ mm}$  stark) wurden  $1 \text{ cm}^2$  große Scheiben ausgestanzt.

Für die PVC-Folien wurde zur Abtrennung der  $Cl^{38}$ -Aktivität von der  $P^{32}$ -Aktivität eine Zweikomponentenanalyse durchgeführt.

### 5.2. Absolutbestimmung

#### a) Aluminium

Das Zerfallsschema von  $Na^{24}$  eignet sich sehr gut zur Absolutbestimmung nach der  $\beta\gamma$ -Koinzidenzmethode<sup>18</sup>. Zur  $\beta$ -Messung wurde ein  $4\pi$ -Methandurchflußproportionalzählrohr verwendet. Zur  $\gamma$ -Messung diente ein Szintillationszähler mit Einkanalimpulshöhenanalysator.

Aus den drei Zählraten ergibt sich die Aktivität zu:  $A = n_{\gamma} n_{\beta} / n_{\beta\gamma}$ .

#### b) Schwefel

Für die Absolutbestimmung wurde das wasserlösliche Ammoniumsulfat verwendet. 100 mg bestrahltes Ammoniumsulfat wurden in  $100 \text{ cm}^3$  Wasser gelöst, ein Tropfen dieser Lösung (etwa  $0,1 \text{ cm}^3$ ) auf einer dünnen Al-Unterlage ( $0,2 \text{ mg/cm}^2$ ) eingetrocknet und vorsichtig in ein  $4\pi$   $\beta$ -Zählrohr eingebracht. Der Tropfen bedeckte die Fläche von etwa  $1 \text{ cm}^2$ . Die Absorption im Präparat und in der Unterlage konnte für die harte Strahlung des Phosphor-32 (1,72 MeV) vernachlässigt werden. Die Schwefel-35-Aktivität wurde mit Hilfe des gemessenen thermischen Neutronenflusses errechnet. Für eine einstündige Bestrahlung betrug die Schwefel-35-Aktivität 3% der Phosphor-32-Aktivität. Die  $P^{33}$ -Aktivität konnte wegen des kleinen Wirkungsquerschnittes und der geringen Isotopenhäufigkeit vernachlässigt werden (kleiner als  $1\text{‰}$ ). Durch Analyse der Abfallkurve ergab sich die  $S^{35}$ -Aktivität am Bestrahlungsende zu etwa 4%.

#### c) Phosphor

Die Absolutbestimmung der  $Si^{31}$ -Aktivität wurde mit Ammoniumdihydrogenphosphat analog der von

<sup>16</sup> R. S. ROCHLIN, Nucleonics 17, 54 [1959].

<sup>17</sup> W. KÖHLER, Forschungsreaktor München Bericht 26 [1960].

<sup>18</sup> G. WOLF, Nukleonik 2, 225 [1961].

P<sup>32</sup> durchgeführt. Die P<sup>32</sup>-Aktivität wurde durch eine Zweikomponentenanalyse abgetrennt.

#### d) Gold

Für die verwendeten Goldfolien wurde zur Messung des thermischen Neutronenflusses ein 2  $\pi$ -Methandurchfluß-Proportionalzählrohr mit Folien kalibriert, deren Aktivität in einer  $\beta\gamma$ -Koinzidenzapparatur absolut bestimmt worden war<sup>17, 18</sup>.

Für Mangan und Chlor wurde noch keine Absolutbestimmung durchgeführt.

### 6. Meßergebnisse

#### 6.1. Vergleich der Zählraten

Für den Vergleich des spektralen Verlaufs des Neutronenflusses in den beiden Positionen sind in Abb. 4 die Zählratenverhältnisse der verschiedenen Detektoren aufgetragen. Diese Zählratenverhältnisse charakterisieren den Neutronenfluß am Ort der Aktivierung. Bei gleichem Resonanzfluß (Au, Mn, Cl) beträgt der Mittelwert des schnellen Flusses im Spezialelement (P, S, Al) nur  $(63 \pm 1)\%$  bzw.  $(72 \pm 1)\%$ . Der Unterschied der beiden Meßreihen ist dadurch

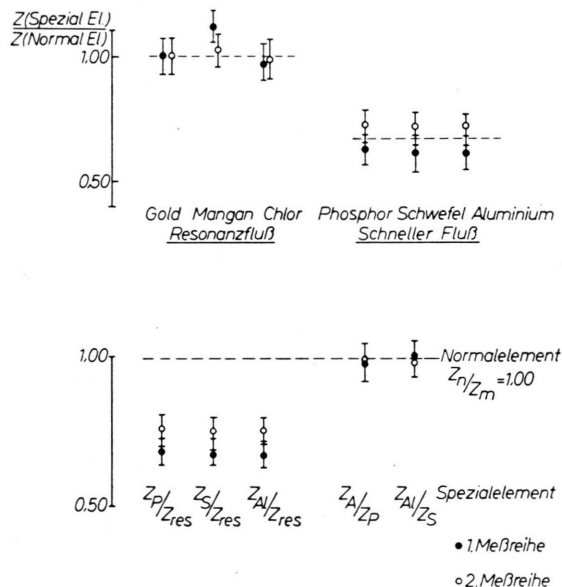


Abb. 4. Die Zählratenverhältnisse der Detektoren für die Aktivierung im Normalelement und im Spezialelement und die Zählratenverhältnisse der verschiedenen Detektoren im Spezialelement relativ zum Verhältnis im Normalelement, das gleich 1 gesetzt wurde.

$Z_{res} \triangleq$  Au mit Cd-Bedeckung,  $Z_p \triangleq$  P<sup>31</sup> (n, p) Si<sup>31</sup> (2,8 MeV),  
 $Z_s \triangleq$  S<sup>32</sup> (n, p) P<sup>32</sup> (3,2 MeV),  
 $Z_{Al} \triangleq$  Al<sup>27</sup> (n,  $\alpha$ ) Na<sup>24</sup> (8,1 MeV).

begründet, daß zum Vergleich die Bestrahlung zwischen verschiedenen Platten des Normalelementes durchgeführt wurde.

Die Abweichung der einzelnen Detektoren vom Mittelwert ist wesentlich kleiner als der abgeschätzte Fehler der Zählratenverhältnisse. Der mittlere Fehler der Einzelzählraten beträgt 3%, der Zählratenverhältnisse demnach 6%. Der größte Einzelfehler ergibt sich aus der Schwierigkeit, die Folien rasch an die Position zwischen die Brennstoffplatten zu bringen. 20–25 sec werden zum Einbringen und Herausziehen der Folienhalterung benötigt. Bei einer Bestrahlungszeit von 10 min kann sich ein Fehler bis zu 2% ergeben.

#### 6.2. Absolute Flußwerte

Aus den absoluten Aktivitäten wurde der integrale Neutronenfluß oberhalb der effektiven Schwellwertenergie folgendermaßen errechnet:

$$\Phi_{(E_n > E_{eff})} = A_{tw} e^{\lambda t_w} / \sigma_0 N (1 - e^{-\lambda t_B}), \quad (8)$$

$t_B$  = Bestrahlungszeit,  $t_w$  = Wartezeit,  $N$  = Anzahl der Kerne des betreffenden Isotops im Detektor,  $\lambda$  = Zerfallskonstante,  $\sigma_0$  = Sättigungswirkungsquerschnitt,  $A_{tw}$  = Aktivität zur Zeit  $t_w$ .

Der Resonanzfluß pro logarithmischen Energieintervall wurde mit Hilfe der von SPRINGER<sup>10</sup> angegebenen Korrekturfaktoren für die Flußdepression in der Umgebung der Resonanz errechnet<sup>17</sup>.

$$\Phi_{res} = \frac{A_{res}}{N I_{eff}}, \quad (9)$$

$I_{eff}$  = das effektive Resonanzintegral für diese Folienstärke,  $A_{res}$  = die Sättigungsaktivität der mit Kadmium bedeckten Folie,  $N$  = die Anzahl der Atome der Folie.

Die Ergebnisse der verschiedenen Meßreihen weichen erheblich voneinander ab (20–30%). Diese Schwankungen sind zum größten Teil durch die auf die mangelhafte Reproduzierbarkeit der Reaktorleistung (5–10%) und auf die Änderung des Neutronenflusses am Meßort zurückzuführen. Es war nicht möglich, den Reaktor für alle Meßreihen bei der gleichen Stellung der Abschaltstäbe zu fahren. Bezieht man die Absolutmessungen auf gleiche Zählraten von Monitorfolien, so ist die maximale Abweichung nur 6%.

Aus vier Meßreihen ergeben sich folgende Mittelwerte und mittlere Fehler:

$$\begin{aligned} \text{Al}^{27} \quad (n, \alpha) \text{Na}^{24} \quad \Phi(E_n > 8,1 \text{ MeV}) : & 8,31 \pm 0,64 \cdot 10^{10} \text{ n/cm}^2 \text{ s MW}, \\ \text{S}^{32} \quad (n, p) \text{P}^{32} \quad \Phi(E_n > 3,2 \text{ MeV}) : & 2,20 \pm 0,11 \cdot 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ s MW}, \end{aligned}$$



$$\begin{aligned}
 &P^{31} (n,p) Si^{31} \quad \Phi(E_n > 2,9 \text{ MeV}) : \\
 &\quad \quad \quad 2,76 \pm 0,25 \cdot 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ s MW}, \\
 &Au^{197} (n,\gamma) Au^{198} \quad \Phi_{\text{res}} : \\
 &\quad \quad \quad 11,80 \pm 0,89 \cdot 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ s MW}.
 \end{aligned}$$

Die gemessenen Werte für den integralen Fluß oberhalb der Schwellwertenergie sind in Abb. 5 eingetragen. Der für eine Einheitsquellstärke berechnete Neutronenfluß wurde auf den Schwefelmeßpunkt normiert und ebenfalls eingetragen. Die Werte der anderen Detektoren stimmen innerhalb der Fehlergrenzen mit dem berechneten Verlauf überein.

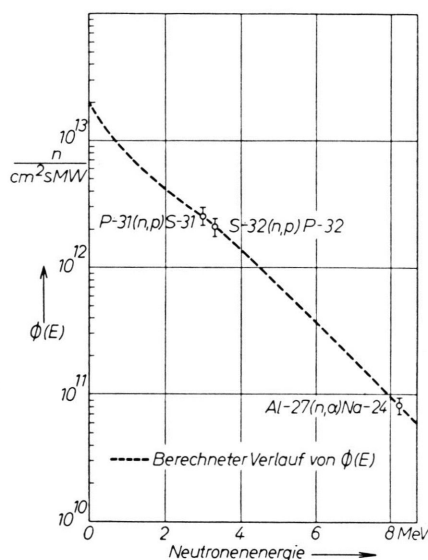


Abb. 5. Der Neutronenfluß oberhalb der Schwellwertenergie für das Spezialelement 48.

Es muß heißen  $P^{31}(n, p) Si^{31}$  an Stelle von  $P^{31}(n, p) S^{31}$ .

Die Fehler der Mittelwerte (5–10%) sind etwa ebenso groß wie die Genauigkeit der Einzelmessungen. Diese ergab sich aus den Fehlern der Bestrahlungszeit, der Wartezeit, der Absolutbestimmung, der Aktivität und der Festlegung der effektiven Schwellwertenergie an Hand des nicht sehr genau bekannten Verlaufs des Wirkungsquerschnittes zu 10%.

Der gemessene integrale schnelle Fluß wurde bis 1 MeV extrapoliert und mit Hilfe des berechneten Verlaufs der differentielle Neutronenfluß ermittelt (Abb. 6). Den mit Gold gemessenen Resonanzfluß extrapolierten wir an Hand der Energieabhängigkeit des Streuquerschnittes vom Wasserstoff bis 0,1 MeV. Die Aktivierung der mit Kadmium bedeckten Goldfolien erfolgt hauptsächlich durch die Neutronen in der Nähe der großen Resonanzstelle bei 4,9 MeV,

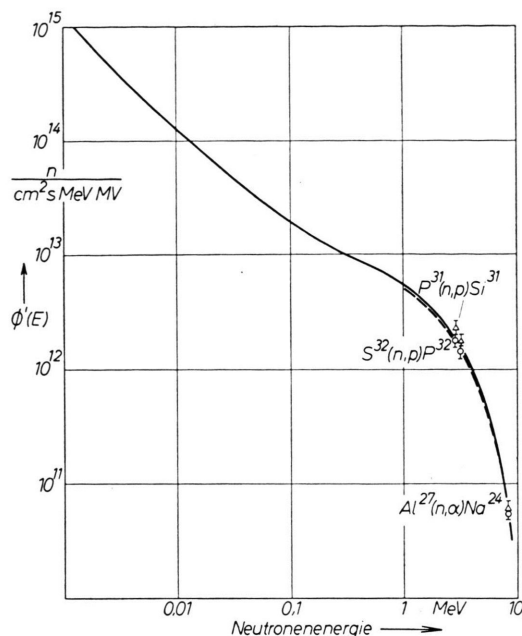


Abb. 6. Der differentielle Neutronenfluß. Der berechnete Verlauf für  $\Phi'(E)$  wurde auf den gemessenen Resonanzfluß normiert (ausgezogene Kurve).  $\circ$  Meßpunkte Spez. Element 48,  $\triangle$  Meßpunkte Normalelement. — Berechneter Verlauf für  $\Phi'(E)$  auf den gemessenen Resonanzfluß normiert.

also durch Neutronen geringerer Energie als die niedrigsten Resonanzen von U-238. Bei einer Extrapolation sind noch die Neutronen hinzuzuzählen, die durch die Resonanzen von U-238 und U-235 verloren gehen (etwa 2%). Die Übereinstimmung im Wert des Resonanzflusses für die zwei Positionen ergab sich zufällig.

Der berechnete Verlauf des differentiellen Neutronenflusses wurde in Abb. 6 auf den gemessenen Resonanzfluß normiert. Die Meßwerte der Schwellwertdetektoren für die Position im Normalelement stimmen innerhalb der Fehlergrenzen mit dem berechneten Verlauf überein. Die Abweichungen in der spektralen Verteilung, die sich aus den Relativmessungen für die mittlere Position des Spezialelementes ergaben, beruhen auf zwei Effekten: Erstens eine Überhöhung des Resonanzflusses ähnlich der des thermischen Flusses, wenn auch wesentlich geringer und zweitens eine Verringerung der schnellen Neutronen durch Wegfall der Quellen in dem Kanal. Die Auswertung früherer Messungen ergab eine Erhöhung des Resonanzflusses um etwa 10%<sup>19</sup> und eine Verringerung des schnellen Neutronenflusses

<sup>19</sup> W. KÖHLER, W. SCHILLING u. T. SPRINGER, FRM-Bericht 24 [1960].

um 10–15%<sup>20</sup>. Beide Effekte führen zur Veränderung des Spektrums. Wird der berechnete Verlauf auf den gemessenen Resonanzfluß bezogen, so ist der berechnete schnelle Fluß 15% zu hoch.

Für die Berechnung der Fehlstellendichte ist aber gerade der spektrale Verlauf im Spezialelement notwendig. Da die Bestrahlungsproben durch die Ver-

drängung des Wassers der Überhöhung des Resonanzflusses entgegenwirken, kann auch für diese Position die berechnete spektrale Verteilung der Berechnung erzeugter Gitterfehlstellen zugrunde gelegt werden.

Herrn Professor Dr. H. MAIER-LEIBNITZ danke ich für das freundliche Interesse, das er dieser Arbeit entgegenbrachte, und Herrn Dr. T. SPRINGER für zahlreiche Hinweise und Anregungen.

<sup>20</sup> s. Anm. <sup>10</sup>, Abb. 11 a, b.

## Zur Chemie bei Kernprozessen

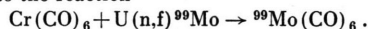
### IV. Anwendung der Uranspaltung zur Synthese von trägerfreiem Molybdän-hexacarbonyl-(<sup>99</sup>Mo)\*

Von F. BAUMGÄRTNER und P. REICHOLD

Aus dem Institut für Radiochemie der Technischen Hochschule München  
(Z. Naturforsch. **16 a**, 945–948 [1961]; eingegangen am 15. Juni 1961)

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

Pure <sup>99</sup>Mo(CO)<sub>6</sub> was produced free of other reaction products by nuclear fission in a mixture of Cr(CO)<sub>6</sub> and U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> according to the reaction



The relative yield ranged up to 60% and was equal to the yield we had found formerly for the production of <sup>103</sup>Ru(C<sub>5</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub> by the same method.

Wir beschrieben kürzlich die Direktmarkierung von Ruthenocen, Ru(C<sub>5</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub>, mit <sup>103</sup>Ru durch Spaltung von Uran in einer Mischung aus U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> und Ferrocen<sup>1</sup>. Nach unserer Arbeitshypothese sollte eine Stoßsubstitution durch Spaltprodukte vorwiegend an den schweren Atomen eintreten und bei chemisch geeigneten Substituenten ganz allgemein die Herstellung markierter Verbindungen, vornehmlich anorganischer Komplexverbindungen, metallorganischer Verbindungen, organischer Jodverbindungen etc. ermöglichen. In weiteren Versuchen haben wir das bestätigt gefunden und wollen als nächstes hier die Spaltsynthese einer anorganischen Komplexverbindung, nämlich <sup>99</sup>Mo-hexacarbonyl, <sup>99</sup>Mo(CO)<sub>6</sub>, beschreiben.

#### Experimenteller Teil

##### 1. Vorbereitung, Bestrahlung und Aufarbeitung der bestrahlten Proben

Zur Gewinnung des trägerfreien <sup>99</sup>Mo(CO)<sub>6</sub> aus Cr(CO)<sub>6</sub> bestrahlten wir in einer Reibschale einige 100 mg schwere gut vermahlene Mischungen von

Cr(CO)<sub>6</sub> und U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> (Molverhältnis 2,8·10<sup>-4</sup> bis 0,4) 20 bis 30 min lang am Kern des FRM bei einem thermischen Neutronenfluß von ca. 10<sup>13</sup> n/cm<sup>2</sup> sec. Mehrere Stunden nach Bestrahlungsende wurden die Proben geöffnet und bei 90 °C im Hochvakuum durch eine ca. 5 cm lange Säule aus Glaswolle sublimiert.

Das γ-Spektrum des Sublimats, aufgenommen mit einem 2,5 × 3" NaJ(Tl)-Kristall und einem Einkanal-Impulshöhenanalysator (Fa. Telefunken), zeigt neben dem <sup>51</sup>Cr der „Fängerverbindung“ nur noch <sup>99</sup>Mo und dessen kürzerlebige Folgeprodukte <sup>99m</sup>Tc. Durch weitere Sublimationen läßt sich der Gehalt an <sup>99</sup>Mo nicht verringern.

Um sicher zu sein, daß unter der Photolinie des <sup>51</sup>Cr bei 0,32 MeV keine γ-Aktivität eines Spaltproduktes verborgen liegt, wurden Versuche mit Uranylacetat ausgeführt, in dem das spaltbare <sup>235</sup>Uran auf 20% angereichert war. Die Aktivität der Spaltprodukte steigerte sich dadurch um das 28-fache und überwog damit bei weitem die <sup>51</sup>Cr-Aktivität. Es zeigte sich eindeutig, daß nur Molybdän-99 das Chrom-hexacarbonyl bei der Sublimation begleitet; siehe Abb. 1.

##### 2. Identifizierung und Trennversuche von <sup>99</sup>Mo(CO)<sub>6</sub>/Cr(CO)<sub>6</sub>

Bei der sublimierbaren <sup>99</sup>Mo-Aktivität handelte es sich um eine trägerfreie Verbindung, die neben einigen

\* Zur Chemie bei Kernprozessen III. Dibenzol-technetium (I)-Kation durch Elementumwandlung aus Dibenzol-molybdän (0). Chem. Ber. **94**, 2198 [1961].

<sup>1</sup> F. BAUMGÄRTNER u. P. REICHOLD, Z. Naturforsch. **16 a**, 374 [1961].