

$\chi$ : Ionisationsenergie [Unsicherheit bedingt durch Gl. (5)].

Der systematische Fehler des Verhältnisses zwischen dem gemessenen Absorptionskoeffizienten  $\chi$  und einem berechneten Koeffizienten  $\chi_{\text{theor}}$  in Abhängigkeit von den genannten Fehlerquellen lässt sich wie folgt beschreiben:

$$\frac{d(\chi/\chi_{\text{theor}})}{\chi/\chi_{\text{theor}}} \simeq -\frac{3}{2} \left\{ \frac{dY}{B} + \frac{dB}{B} \right\} + \frac{dT}{T} - \frac{1}{2} \left\{ \frac{dJ}{J} + \frac{dL}{L} + 3 \frac{dX}{X} \right\} + 4 \frac{d\chi}{\chi}.$$

Hierin sind die Vorzeichen der einzelnen Anteile beibehalten, um zu zeigen, in welcher Richtung das Ergebnis bei Änderung einzelner Parameter geändert wird.

Die einzelnen Fehleranteile werden den experimentellen Gegebenheiten entsprechend durch

$$dY/B = 0,5\%, \quad dB/B = 2\%, \quad dT/T = 2\%, \quad dJ/J = 10\%, \\ dL/L = 5\%, \quad dX/X = 3\%, \quad d\chi/\chi = 1,5\%$$

abgeschätzt, so daß für den systematischen Fehler des Koeffizientenverhältnisses

$$\frac{d(\chi/\chi_{\text{theor}})}{\chi/\chi_{\text{theor}}} \simeq 10\% \quad \text{zu erwarten ist.}$$

## Bestimmung der mittleren $\beta$ -Energie pro Spaltung bei Uran<sup>235</sup> mit Hilfe der Thermolumineszenzdosimetrie\*

Von NORBERT HÄRING

Laboratorium für Technische Physik der Technischen Hochschule München

(Z. Naturforsch. 19 a, 978—990 [1964]; eingegangen am 25. Februar 1964)

Die mittlere  $\beta$ -Energie pro Spaltung von U<sup>235</sup> ergab sich in der vorliegenden Arbeit zu 8,6 MeV  $\pm 4\%$ .

Dabei wurde die gesamte aus den Spaltprodukten einer Uranfolie emittierte  $\beta$ -Energie in einer Calciumfluoridkugel (Pulver) absorbiert.

Als Maß für die absorbierte Energie diente die ihr proportionale Thermolumineszenzintensität des Calciumfluoridpulvers. Die relative Zuordnung dieser beiden Größen wurde mit Hilfe eines absolut geeichten P<sup>32</sup>-Präparats erreicht.

Gleiche Geometrie, möglichst gleiche Versuchsbedingungen auch bei den entsprechenden Eichversuchen und eine Vielzahl von Einzelmessungen der Thermolumineszenzintensität lieferten gut reproduzierbare Werte.

Die Anteile zur absorbierten Energie aus verschiedenen  $\gamma$ -Intensitäten konnten experimentell oder rechnerisch ermittelt und somit berücksichtigt werden.

Für die Energiebilanz der Spaltung von Uran 235 sind neben den Energien der Reaktionspartner (Spaltbruchstücke, prompte Neutronen und  $\gamma$ -Quanten) die  $\beta$ - und  $\gamma$ -Energien der Spaltprodukte von Bedeutung. Während die mittlere  $\gamma$ -Energie pro Spaltung recht gut bekannt ist, weichen die Angaben über die mittlere  $\beta$ -Energie pro Spaltung in der Literatur<sup>1-3</sup> beträchtlich voneinander ab. In der vorliegenden Arbeit sollte darum diese Größe so weit wie möglich direkt experimentell gemessen werden.

### 1. Meßmethoden

#### 1.1. Prinzip

In Uran 235 werden im Neutronenstrahl eines Reaktors Spaltungen erzeugt. Die von den Spalt-

produkten emittierte  $\beta$ - und  $\gamma$ -Energie wird in einer Calciumfluoridkugel (Pulver, Sättigungsschichtdicke für alle  $\beta$ -Energien) absorbiert, in deren Mitte die Spaltfolie liegt. Die Intensität der dadurch im Calciumfluorid angeregten Thermolumineszenz ist proportional der absorbierten Energie; sie wird, da sie im Calciumfluorid gespeichert ist, nach abgeschlossener Anregung in einer anderen Apparatur gemessen. Ersetzt man die Spaltfolie durch eine Goldfolie gleicher Geometrie und bringt diese unter gleichen Bedingungen in den Neutronenstrahl, so kann durch ihre Aktivität in üblicher Weise die Neutronendosis und damit die Anzahl der Spaltungen ermittelt werden. Die Absoluteichung der Thermolumineszenzintensität in Abhängigkeit von der absorbierten Energie geschieht in einem dritten Versuch ohne Neutronenstrahl mit einem geeichten Phosphor-32-

\* Auszug aus der Dissertation, Technische Hochschule München 1963.

<sup>1</sup> S. GLASTONE, The Elements of Nuclear Reactor Theory, McMillan Comp., New York 1955.

<sup>2</sup> G. ALZMANN, Nukleonik 3, 7 [1961].

<sup>3</sup> P. ARMBRUSTER u. H. MEISTER, Z. Phys. 170, 274 [1962].



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 digitized 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.

Präparat wiederum gleicher Geometrie, das an Stelle der Spaltfolie in die Calciumfluoridkugel eingeführt wird. Ist man in der Lage, die absorbierte Energie in einen  $\beta$ - und in einen  $\gamma$ -Anteil der Spaltproduktaktivität aufzuspalten, so läßt sich für eine gemessene Anzahl von Spaltungen die im Mittel von den Spaltprodukten emittierte  $\beta$ -Energie pro Spaltung angeben.

Aus dem bisher Gesagten geht hervor, daß die beschriebene Anordnung modifiziert werden muß, weil die verschiedentlich auftretenden  $\gamma$ -Intensitäten ebenfalls zum Teil absorbiert und damit einen Beitrag zur Thermolumineszenz liefern würden; lassen sie sich experimentell nicht ganz eliminieren, so muß ihr Beitrag zur absorbierten Energie gemessen werden. Außerdem soll im folgenden noch kurz auf die Meßmethoden eingegangen werden, die zur Bestimmung wichtiger Größen angewandt wurden.

## 1.2. Thermolumineszenz

Als thermolumineszierende Substanz wurde Calciumfluoridpulver gewählt (aus guten natürlichen Kristallen gemörser, Korngröße 0,06 bis 0,075 mm), dessen Eigenschaften bereits an anderer Stelle<sup>4</sup> näher untersucht worden waren<sup>5</sup>. Nach Ausheizen (2<sup>h</sup>: 500 °C) der im natürlichen Zustand schon gespeicherten Anregung zeigt dieses Material nach erneuter  $\beta$ - oder  $\gamma$ -Anregung drei Thermolumineszenzmaxima bei 125, 213 und 340 °C (Abb. 1). Die

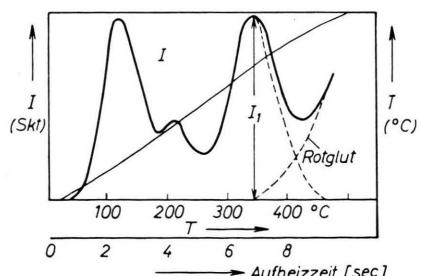


Abb. 1. Glow-Kurve von natürlichem Flußspat.

<sup>4</sup> K. LUCHNER, Z. Phys. **149**, 435 [1957].

<sup>5</sup> Von der Verwendung des zur Dosimetrie im allgemeinen besser geeigneten künstlichen mangankontaminierten Calciumfluorids<sup>6, 7</sup> wurde abgesehen, weil die Nachteile des natürlichen Materials (Fading der gesamten Lichtsumme) für Laboruntersuchungen (im Gegensatz zu einer allgemeinen technischen Anwendung) unbedeutend waren.

<sup>6</sup> J. H. SCHULMAN, F. H. ATTIX, E. J. WEST u. R. J. GINTHER, Rev. Sci. Instrum. **31**, 1263 [1960].

<sup>7</sup> N. HÄRING u. M. SCHÖN, Selected Topics in Radiation Dosimetry, Int. Atomic Energy Agency, Wien 1961.

<sup>8</sup> Bisher und im folgenden der Einfachheit halber meist als „Calciumfluoridkugel“ bezeichnet.

Intensität des Maximums bei 340 °C wurde in der vorliegenden Arbeit als Meßgröße für die absorbierte Energie ausgewählt, wobei die Intensität bei allen Versuchen in dem Bereich lag, in dem die Proportionalität zwischen absorbiertener Energie und Lumineszenzintensität sicher gewährleistet ist. Außerdem schien es zweckmäßig, in allen Experimenten (außer z. Tl. in Abschnitt 1.3) immer die gleiche Gesamtmenge Calciumfluorid ( $60 \pm 0,01$  g) im gleichen Volumen zu verwenden. Wegen der scheibenförmigen Gestalt der jeweiligen  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahler (Spaltfolie bzw. P<sup>32</sup>-Präparat) war das Calciumfluorid in Form eines Rotationskörpers<sup>8</sup> so angeordnet, daß die kürzeste Entfernung jedes Punktes der strahlenden Kreisfläche ( $1 \text{ cm}^2$ ) zur Oberfläche des Calciumfluorids immer gleich groß war. Der Spalt zum Einführen der Strahler betrug 0,7 mm, was für die  $4\pi$ -Geometrie einen unbedeutenden Fehler ergibt. Nach jeder Anregung wurde die gesamte Pulvermenge gründlich durchgemischt und danach aus Portionen zu je 5 mg der Mittelwert der im Pulver absorbierten Energie gemessen. Die Pulvermengen von ca. 5 mg mußten sehr sorgfältig reproduziert werden, da die Lumineszenzintensität natürlich auch proportional der Masse des Calciumfluorids ist. Dies ermöglichte eine Vorrichtung (s. Abschnitt 2.1), mit der jeweils auf gleiche Pulvermengen eingestellt werden konnte. Diese Portionen wurden so gut wie möglich in einer Einkornsicht gleicher Fläche auf das Heizblech der Thermolumineszenzapparatur (s. Abschn. 2.1.) gestreut<sup>9</sup> und dann die Lichtintensität  $I_1$  gemessen. Um dabei eventuelle Fehler durch ungleichmäßige Pulvermengen, ungünstige Verteilung der Schichten und Empfindlichkeitsschwankungen im Pulver zu erkennen und auszugleichen, wurde jede Schicht nach der Messung von  $I_1$  mit einer „Einheitsdosis“ bestrahlt. Dazu diente ein flächenförmiges Sr<sup>90</sup>-Präparat, 800  $\mu\text{c}$ , im Abstand 1 cm über der Schicht mit einer Bestrahlungsdauer von 30 Sekunden. Der daraus erhaltene Intensitätswert

<sup>9</sup> Diese Apparatur wurde innerhalb eines Forschungsauftrages „Dosimetrie mit Hilfe der Thermolumineszenz“<sup>7</sup> entwickelt; dort diente je ein Heizblech mit einer aufgeklebten Calciumfluorid-Mangan-Schicht als Strahlungsindikator. In der vorliegenden Arbeit war die Bindung des Pulvers an einen Träger nicht möglich. Darum mußte zu lösen, gut reproduzierbare Calciumfluoridmengen übergegangen werden. Dieses Verfahren hatte sich im Rahmen einer weiteren Arbeit „Versuch einer körperinneren Dosimetrie mit Hilfe der Thermolumineszenzmethode nach Inkorporation von Sr-90 bei der Ratte“<sup>10</sup> bereits gut bewährt.

<sup>10</sup> H. KRIESEL, N. HÄRING u. G. NEUMANN, Strahlentherapie **122**, 41 [1963].

$I_2$  wurde auf den Mittelwert der Einheitsdosis aus vielen Schichten  $(I_2)_m$  bezogen und damit der erste aus dem eigentlichen Experiment erhaltene Wert  $I_1$  korrigiert. Diese Korrektur zeigte sich als besonders nützlich (s. Abschn. 3.1.2, Tab. 3). Von ca. 12 000 aus der 60 g-Calciumfluorid-Gesamtmenge möglichen Schichten wurden jeweils 100 bis 200 pro Versuch hergestellt und ausgewertet; damit wird der statistische Fehler sehr klein gehalten. Die Wahl der Thermolumineszenz-*Intensität* als Maß für die absorbierte Energie machte es außerdem notwendig, gleichzeitig auch die Aufheizzeit bis zum Erreichen der Maximumtemperatur zu messen, um Fehler durch eine Maßstabsverschiebung auf der Temperatur-(entsprechend Zeit-)achse zu vermeiden. Lichtintensität und Temperatur wurden mit einem Lichtpunktlinienschreiber registriert, der Lumineszenzintensitätswert gleichzeitig auf einem Zeigerinstrument abgelesen.

### 1.3. Elimination des $\gamma$ -Untergrundes im Neutronenstrahl

Im Neutronenstrahl des Reaktors ist ein  $\gamma$ -Untergrund vorhanden, der in der bis jetzt beschriebenen Anordnung (1.1.) wesentlich zur Thermolumineszenzanregung beiträgt. Um diesen Anteil völlig auszuschalten, schien es am besten, den Neutronenstrahl (Bestrahlungsort) und die Calciumfluoridkugel (Meßort) räumlich zu trennen und die Spaltfolie senkrecht zum Neutronenstrahl zwischen Bestrahlungs- und Meßort hin- und herpendeln zu lassen. Eine solche Anordnung ist jedoch nur unter der Voraussetzung der in Abschn. 1.1. angegebenen äquivalent, wenn einerseits die Transportzeit klein gegen die kürzeste Halbwertszeit der Spaltprodukte ist und andererseits die Bestrahlungszeit ( $t_b$  = Aufenthaltsdauer der Spaltfolie im Neutronenstrahl) ebenfalls klein, höchstens in der Größenordnung dieser kleinsten Halbwertszeit ist, damit nicht schon ein wesentlicher Teil der kurzlebigen Aktivität während  $t_b$  abklingen kann. Da die kleinsten, u. U. für die Bestimmung der emittierten Energie noch bedeutenden Halbwertszeiten in der Größenordnung von 1/10 sec liegen<sup>3</sup>, wurde für Bestrahlungs- und Meßzeit je 1/10 sec, für die Transportzeit von Hin- und Rücklauf je 5/100 sec als ausreichend angesehen. Diese Forderung erfüllt ein modifiziertes Kurbelgetriebe mit 3 Umdrehungen pro Sekunde, dessen Kreuzkopf in Abhängigkeit vom Drehwinkel  $\alpha$  bei jeder Um-

drehung einen Weg  $s$  zurücklegt (s. Abschn. 2.3):

$$s = a \sin \alpha + b \sin 3 \alpha.$$

In jeder Periode findet also die gleiche Anzahl von Spaltungen statt. Während vieler Perioden baut sich die Aktivität entsprechend der verschiedenen Halbwertszeiten der Spaltprodukte auf, wobei die Bestrahlungspausen (aus Meß- und Transportzeit) den Gleichgewichtswert der erzeugten Spaltproduktaktivität herabsetzen; und zwar so, daß die dem wahren Neutronenfluß  $\Phi$  entsprechende Spaltrate durch die Spaltrate eines effektiven Neutronenflusses  $\Phi_{\text{eff}}$  ersetzt werden muß. Dieser Bruchteil ist gleich dem Verhältnis

$$\delta = \frac{\text{wahre Bestrahlungszeit innerhalb einer Periode } t_b}{\text{Periodendauer } t_p}$$

oder

$$\delta = \frac{\text{wahre Bestrahlungszeit über alle Perioden } t_B}{\text{Laufzeit f. alle Perioden während Neutronenbestrahlung } t_N}.$$

Soll eine dem  $\Phi_{\text{eff}}$  äquivalente Aussage auch für den im Calciumfluorid absorbierten Energieanteil gelten, so ist zu verlangen, daß für jede Halbwertszeit der ins Calciumfluorid emittierte Bruchteil gleich groß ist. Das Kurbelgetriebe bewirkt, analog der obigen Überlegung, daß über eine einzelne Periode betrachtet nur ein fester Bruchteil (etwa 1/3) der emittierten Energie in die Meßzeit fällt und dies, wegen der kleinen Periodendauer, wiederum einheitlich für alle Halbwertszeiten. Wenn aber von diesem, im Calciumfluorid absorbierten und damit gemessenen Energieanteil auf die über viele Perioden insgesamt emittierte Energie einer abklingenden Aktivität geschlossen werden soll, so muß die Emission während des gesamten Abklingens gemessen werden. Für ein Gemisch von Aktivitäten verschiedener Halbwertszeiten gibt folglich das Isotop mit der größten Halbwertszeit an, wie lange dieses Isotop einen wesentlichen Beitrag zur insgesamt emittierten Energie liefert. (Selbstverständlich sind Energiebetrag und Häufigkeit des Isotops dabei gleichwertige Faktoren.) Für die Spaltfolie bedeutet diese Überlegung, daß auch nach dem Abschalten des Neutronenstrahls im gleichen Rhythmus weitergemessen werden muß, um die Emission der langlebigen Komponente der Spaltprodukte im gleichen Verhältnis, wie vorher die kurzlebige, zu erfassen. 30 Stunden wurden als ausreichend angesehen.

Zur Berechnung der insgesamt aus der Spaltfolie emittierten Energie ist dann, neben der Kenntnis der absorbierten Energie, nur noch das Verhältnis

maßgebend:

$$b = \frac{\text{Wahre Meßzeit pro Periode } t_m}{\text{Periodendauer } t_p} \quad \text{bzw.}$$

$$= \frac{\text{Wahre Gesamtmeßzeit } t_M}{\text{Gesamtversuchsdauer } t_V},$$

$$E_{\text{em}} = E_{\text{abs}} (t_V/t_M). \quad (1)$$

Das Verhältnis ist wegen der relativ langen Zeiten (Stunden) sehr genau zu messen. Über die Bestimmung der einzelnen Zeiten siehe Abschnitt 1.8. und 1.9.

#### 1.4. Bestimmung des $\gamma$ -Anteils der Spaltproduktaktivität zur absorbierten Energie

Der von den Spaltprodukten emittierte und im Calciumfluorid absorbierte  $\gamma$ -Energieanteil wurde experimentell mit Hilfe einer Sandwich-Methode unter der Annahme eines mittleren Absorptionskoeffizienten  $\varkappa_m$  für das Calciumfluoridpulver ermittelt.

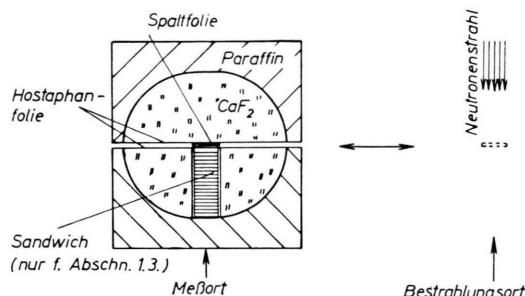


Abb. 2. Versuchsanordnung (schematisch).

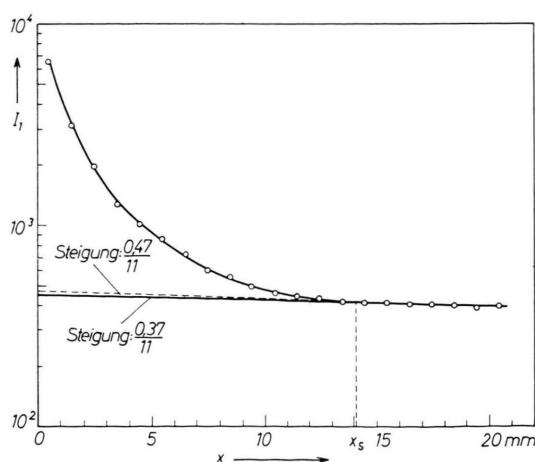


Abb. 3. Die Thermolumineszenzintensität  $I_1$  von Calciumfluorid als Funktion der Absorberdicke.

<sup>11</sup> F. C. MAIENSCHEN, Pile Neutron Research, Int. Atomic Energy Agency, Wien 1962.

Trägt man den Logarithmus der in den Probevolumina (Abb. 2) absorbierten  $\beta$ - und  $\gamma$ -Energien über der Schichtdicke  $x$  auf (Abb. 3), so ergibt die Verbindung der Punkte, die außerhalb der Sättigungsschichtdicke  $x_s$  für alle  $\beta$ -Strahlen liegen, eine Gerade, deren Neigung  $\varkappa_m$  darstellt und die nach  $x = 0$  extrapoliert für jedes Probevolumen die Lumineszenzintensitätswerte entsprechend der dort absorbierten  $\gamma$ -Energien liefert.

Das Experiment ergab zwar einen recht guten Wert für  $\varkappa_m$ , die Unsicherheit in der Bestimmung einer solchen Neigung (Abb. 3), vor allem aber auch der etwas kleine Wert von  $x_s$  ( $x_s \varrho = 2,2 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$  entsprechend  $E_{i, \beta \text{max}} = 4,5 \text{ MeV}$ ) ließ es ratsam erscheinen, den zur Kontrolle gerechneten Wert für die absorbierte  $\gamma$ -Energie pro Spaltung zu verwenden.

Der Berechnung wurden die bekannten  $\gamma$ -Energiegruppen  $E_i$  der Spaltprodukte mit ihren Gewichtsfaktoren<sup>11</sup>  $a_i$  und die  $\varkappa/\varrho$ -Werte für Aluminium<sup>12</sup> (es kommt dem Calciumfluoridpulver am nächsten) zugrunde gelegt. Die  $\varkappa/\varrho$ -Werte statt der  $\mu/\varrho$ -Werte zu verwenden, wird mit der Vermutung begründet, daß nur die auf Elektronen übertragene Energie zur Lumineszenzanregung beiträgt; einen Hinweis darauf gibt der gemessene Verlauf der Lumineszenzintensität in Abhängigkeit von der  $\gamma$ -Energie bei konstanter Dosis<sup>6</sup>.

Im Experiment wird  $E_\gamma$  aus dem Verhältnis der Flächen bestimmt:

$$E_{\gamma, \text{abs}} / (E_\beta + E_{\gamma, \text{abs}}) = F_\gamma / (F_\beta + F_\gamma).$$

Die Berechnung dieses Verhältnisses ergibt unter Berücksichtigung der  $a_i$ ,  $E_i$  und  $\varkappa_i$ -Werte<sup>11, 12</sup>,

$$E = \sum a_i E_i = 1,075 \text{ MeV}$$

und

$$E_{\gamma, \text{abs}} = x \sum a_i E_i \varkappa_i / \varrho = 8,416 \cdot 10^{-2}$$

für eine Schichtdicke  $x = 2 \text{ cm}$  und  $\varrho = 1,60 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ :

$$E_{\gamma, \text{abs}} / (E_\beta + E_{\gamma, \text{abs}}) = 6,1\%.$$

#### 1.5. Bestimmung des $\gamma$ -Untergrundes aus der Umgebungsstrahlung unter Berücksichtigung der „Störlumineszenz“ und der Rotglut

In der Umgebung des Reaktorstrahlrohres ist ein  $\gamma$ -Untergrund vorhanden, der durch die Abschirmung nicht vollständig zu eliminieren war und der

<sup>12</sup> R. D. EVANS, The Atomic Nucleus, McGraw-Hill Book Comp., New York 1955.

also zur Thermolumineszenzanregung beitrug. Dieser Beitrag ist zwar absolut gesehen sehr klein, er spielt jedoch bei der Bestimmung des in Abschnitt 1.4. erwähnten  $\beta/\gamma$ -Verhältnisses eine Rolle, weil auch der  $\gamma$ -Anteil der Spaltproduktaktivität nur gering ist.

Daneben tritt im Calciumfluorid noch eine Thermolumineszenz auf, die nicht auf eine Anregung durch ionisierende Strahlung zurückgeführt werden kann; ihr Anregungsmechanismus ist noch nicht genau bekannt. Sie zeigt sich meist nach einer mechanischen Beanspruchung des Calciumfluorid-Pulvers (mörsern, sieben, umschütten usw.) bzw. nach Ultraviolett-Bestrahlung oder einer elektrischen Aufladung der Kristalle.

Die Lumineszenz-Intensitätswerte für  $\gamma$ -Untergrund und Störlumineszenz wurden durch Nullproben bestimmt. Die beiden Anteile wurden in Vorversuchen bei ein- und abgeschaltetem Reaktor getrennt und im Hauptversuch durch äquivalente Kontrollproben außerhalb der Calciumfluoridkugel gemessen.

Als weitere Leuchterscheinung ist noch der beim Aufheizen auftretende Rotglutanteil (Abb. 1) zu erwähnen, der von allen Thermolumineszenzintensitäten zu subtrahieren ist. Auch hier liefert eine große Anzahl von Messungen (50 pro Versuch) einen gut reproduzierbaren Mittelwert.

### 1.6. Absoluteichung der absorbierten Energie

Zur Absolutbestimmung der absorbierten Energie fand an Stelle der Uranfolie ein Phosphor-32-Präparat gleicher Geometrie als geeichter Energiestrahl für die Eichversuche besonders geeignet, zumal seine mittlere  $\beta$ -Energie  $E_m$  von 0,70 MeV einigermaßen nahe der erwarteten mittleren  $\beta$ -Energie der Spaltprodukte (um 1 MeV) ist; außerdem entfällt jede Korrektur für einen  $\gamma$ -Anteil. Die Verwendung eines trügerfreien, auf einer dünnen Hostaphanfolie eingetrockneten  $P^{32}$ -Präparats macht die Korrekturen für Selbstabsorption bzw. Absorption in der Unterlage unnötig bzw. unbedeutend. Ein zusammen mit dem Präparat hergestelltes Aliquot wurde in einer  $4\pi$ -Zählapparatur<sup>13</sup> absolut geeicht.

<sup>13</sup> G. WOLF, Nukleonik 2, 7 [1960].

### 1.7. Bestimmung der Meßzeit

Unter „Meßzeit  $t_m$ “ soll die Aufenthaltsdauer der Spaltfolie (bzw. eines anderen Energiestrahlers) im Calciumfluorid pro Periode verstanden werden, unter „Gesamtmeßzeit  $t_M$ “ die Summe aller Meßzeiten während der Gesamtversuchszeit  $t_V$  über  $N$  Perioden. Bei dem beschriebenen Kurbelgetriebe kann  $t_m$  bei kleinem  $N$  sehr leicht gemessen werden und, weil sie ein fester Bruchteil einer Periodendauer  $t_p$  ist, auf  $N$  umgerechnet werden. Für große Umdrehungszahlen  $N$  ( $\approx 10^5$ ) wirken sich aber schon kleine Fehler in der Bestimmung von  $t_m$  aus; darum schien eine direkte experimentelle Bestimmung von  $t_M$  günstiger, zumal bei der angewandten Methode auch die Bruchteile zu  $t_m$  berücksichtigt wurden, in denen sich der jeweilige Strahler beim Hin- und Rücklauf schon vor Erreichen des Totpunktes im Calciumfluorid befindet.

Bestrahlt man das Calciumfluorid mit dem  $P^{32}$ -Präparat eine Zeit  $t_{P^{32}}$  und in einem zweiten Versuch alternierend eine Zeit  $t_V$ , so ergeben die dazugehörigen Thermolumineszenzwerte  $I$  und  $I'$  die wahre Bestrahlungszeit

$$t_M = (I'_1/I_1) t_{P^{32}}.$$

### 1.8. Bestimmung der Anzahl der Spaltungen

Wie schon in Abschnitt 1.1. erwähnt, wurde die Anzahl der Spaltungen von  $U^{235}$ -Kernen aus der Aktivierung einer Goldfolie genau gleicher Geometrie wie die Spaltfolie ermittelt. Da diese beiden Messungen nicht gleichzeitig durchgeführt werden können, sind vor allem zwei Voraussetzungen notwendig. Erstens muß über die ganze Zeit (Goldaktivierung und Spaltversuch) der Neutronenfluß im Mittel konstant bleiben. Diese Voraussetzung war am FRM nach etwa 50 Stunden durchgehender Betriebszeit gegeben, die Leistung schwankt dann noch um einige %. Die zweite Voraussetzung für die Übertragbarkeit der aus der Goldaktivierung ermittelten Neutronendosis auf die Spaltversuche war eine sehr genaue und sorgfältige Justierung der beiden Folien bezüglich des Neutronenstrahls (Abschnitt 2.4.).

Analog wie in Abschnitt 1.7. bei der Meßzeit wurde hier auf die Bestimmung der Spaltrate während einer einzelnen Periode verzichtet, statt dessen die während der Gesamtbestrahlungszeit  $t_B$  auffallende Neutronendosis gemessen und daraus die Anzahl der Spaltungen ermittelt.

Soll die Neutronendosis durch eine Goldfolie bestimmt werden, so gilt

$$a_{\text{Au}} = N_{\text{Au}} \sigma_{\text{Au}} \Phi_{\text{eff}} (1 - \exp\{-\lambda_{\text{Au}} t_N\}) .$$

Berücksichtigt man, daß auch Neutronen, die nicht zur Spaltung beitragen, einen Anteil zur Goldaktivierung bringen, so ergibt der für die Spaltung maßgebende effektive Resonanz-Neutronenfluß

$$(\Phi_{\text{Res}})_{\text{eff}} = \Phi_{\text{eff}} - \Phi_s .$$

Aus dem gemessenen Verhältnis  $\Phi_s : \Phi = 1 : 20$  folgt dann

$$(\Phi_{\text{Res}})_{\text{eff}} = 0,95 \quad \Phi_{\text{eff}} = 0,95 \frac{a_{\text{Au}}}{N_{\text{Au}} \sigma_{\text{Au}} (1 - \exp\{-\lambda_{\text{Au}} t_N\})}$$

Für die Anzahl der Spaltungen gilt

$$\begin{aligned} n &= N_{\text{U}} \sigma_{\text{U}} t_{\text{N}, \text{U}} (\Phi_{\text{Res}})_{\text{eff}} \\ &= 0,95 \frac{N_{\text{U}} \sigma_{\text{U}} t_{\text{N}, \text{U}} a_{\text{Au}}}{N_{\text{Au}} \sigma_{\text{Au}} (1 - \exp\{-\lambda_{\text{Au}} t_{\text{N}, \text{Au}}\})} . \end{aligned} \quad (2)$$

### 1.9. Abschätzung des Gültigkeitsbereichs für $E_{\text{em}}$ nach Gl. (1) und $n$ nach Gl. (2)

Soll die Zahl der Spaltungen aus der Aktivität der Goldfolie berechnet werden, so ist zuerst die Gültigkeit der Beziehung

$$\Phi_{\text{eff}} / \Phi = \delta = t_{\text{p}} / t_N = t_{\text{b}} / t_{\text{p}}$$

zu untersuchen, wobei  $\Phi$  der konstante Fluß im Neutronenstrahl und  $\Phi_{\text{eff}}$  der im zeitlichen Mittel auf die hin- und herbewegte Folie auftreffende effektive Fluß ist.

Die Spaltrate ist während  $t_{\text{b}} = \text{const} = c$ , während  $\alpha t_{\text{b}}$  ist  $c = 0$  (Abb. 4).

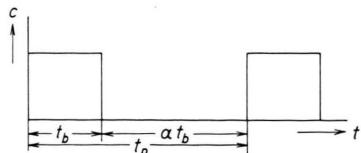


Abb. 4. Verlauf der Spaltrate.

Die Aktivitätsänderung ist dann allgemein gegeben durch

$$\dot{a}_n = \lambda (c - a) .$$

$$\begin{aligned} E_{\text{abs}} &= C \int_{t_{\text{b}} + t_{\text{t}}}^{t_{\text{b}} + t_{\text{t}} + t_m} (a_1 + a'_{\infty} \exp\{-\lambda t_{\text{b}}\}) \exp\{-\lambda(t - t_{\text{b}})\} dt \\ &= (C/\lambda) (a'_{\infty} + \exp\{\lambda t_{\text{b}}\} - 1) (\exp\{-t_{\text{b}}(2 - \varepsilon/2)\} - \exp\{-\lambda t_{\text{b}}(2 + \varepsilon/2)\}) , \end{aligned}$$

<sup>14</sup> Siehe Abschn. 3.3.

Es läßt sich zeigen, daß die Aktivität  $a_n$  am Ende der  $n$ -ten Bestrahlungszeit und die Aktivität  $a'_n$  am Ende der  $n$ -ten Periode gegeben ist durch

$$\begin{aligned} a_n &= c + (a'_{n-1} - c) \cdot \exp\{-\lambda t_{\text{b}}\} , \\ a'_n &= c \frac{\exp\{\lambda t_{\text{b}}/\delta\} - 1}{\exp\{\lambda t_{\text{b}}\} - 1} \cdot (1 - \exp\{-\lambda t_{\text{b}} n/\delta\}) \\ &= a'_{\infty} \cdot (1 - \exp\{-\lambda t_N\}) . \end{aligned}$$

Da die Zeitabhängigkeit nur in  $n$  (Periodenzahl) enthalten ist, haben wir ein rein exponentielles Anklingen der Spaltproduktaktivität, wobei  $n t_{\text{b}}/\delta = t_N$  die gesamte Versuchszeit ist, während der der Neutronenstrahl Spaltungen erzeugt.

Für Gold mit  $\lambda t_{\text{b}} = 8 \cdot 10^{-7} \ll 1$  folgt daraus

$$\begin{aligned} a'_n &= N_{\text{Au}} \sigma_{\text{Au}} \delta \Phi (1 - \exp\{-\lambda t_N\}) \\ &= N_{\text{Au}} \sigma_{\text{Au}} \Phi_{\text{eff}} (1 - \exp\{-\lambda t_N\}) . \end{aligned}$$

Die Prüfung der Gleichung

$$E_{\text{em}} = E_{\text{abs}} (t_{\text{V}}/t_{\text{M}}) = E_{\text{abs}} \cdot 1/b$$

ergibt, daß bei den gegebenen Versuchsbedingungen ( $t_{\text{p}} = 3 t_{\text{b}} = 0,3 \text{ sec}$ ;  $t_{\text{m}} = t_{\text{b}} = 0,114 \text{ sec}$ ) das Verhältnis  $E_{\text{abs}}/E_{\text{em}}$  für  $\tau = 0,069 \text{ sec}$  nahezu 0,3 beträgt. Mit steigender Halbwertszeit nähert sich dieses Verhältnis schnell dem Sollwert <sup>14</sup>  $b = 0,3770$ , weil die Aktivitätsänderung während einer Periode immer geringer wird. So ist dieses Verhältnis für  $\tau = 0,693 \text{ sec}$  bereits 0,376. Die folgende Rechnung führt zu diesem Ergebnis, wenn man gleichzeitig berücksichtigt, daß für kleine Halbwertszeiten die Sättigungsaktivität schnell erreicht ist und darum  $a'_{\infty}$  den Aktivitätswert zu Beginn jeder Periode darstellt (Abb. 5).

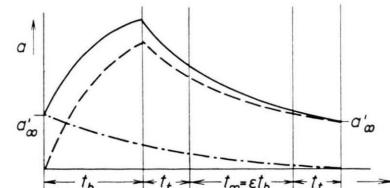


Abb. 5. Verlauf einer kurzlebigen Spaltproduktaktivität während einer Periode.

$$\begin{aligned} \text{——} a &= c + (a'_{\infty} - c) \exp\{-\lambda t\} , \\ \text{---} a &= c (1 - \exp\{-\lambda t\}) , \\ \text{---} a &= a_{\infty} \exp\{-\lambda t\} . \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 E_{\text{em}} &= C \left\{ \int_0^{t_b} (a + a'_\infty \exp\{-\lambda t\}) dt + \int_{t_b}^{3t_b} (a_1 + a'_\infty \exp\{-\lambda t_b\}) \exp\{-\lambda(t-t_b)\} dt \right\} \\
 &= C \left\{ t_b + (1/\lambda) [a'_\infty - \exp\{-2\lambda t_b\}] + (1 - a'_\infty) \exp\{-3\lambda t_b\} \right\}, \\
 \frac{E_{\text{abs}}}{E_{\text{em}}} &= \begin{cases} \text{für } \lambda t_b = 1, \quad \tau = 0,069 \text{ sec; } & = \frac{0,0291}{0,0995} = 0,293 \\ \text{für } \lambda t_b = 0,1 \quad \tau = 0,693 \text{ sec; } & = \frac{0,0376}{0,10} = 0,376 \end{cases} \approx \frac{t_M}{t_V}.
 \end{aligned}$$

## 2. Apparaturen

### 2.1. Die Thermolumineszenzapparatur

Die Thermolumineszenzapparatur (Abb. 6) ist in <sup>6</sup> bereits beschrieben. Sie besteht im wesentlichen aus drei Teilen:

1. für die Thermolumineszenzintensitätsmessung: ein Photoelektronenvervielfacher mit Hochspannungsgerät, Gleichstromverstärker, Strommeßinstrument und Schreiber;

2. der Aufheizvorrichtung für die je 5 mg Calciumfluorid mit dem Heizblech (0,05 mm Eisen vernickelt), dem Heiztrafo, primärseitig durch Schieberwiderstand regelbar und

3. dem Thermorelais, bestehend aus dem Thermoelement mit Verstärker, Relais (zum Abschalten des Heizstromes vor Erreichen der Rotglut) und Schreiber. Die Multiplierrmpfindlichkeit kann durch ein Lichtnormal (radioaktive Leuchtfarbe) auf einem konstanten Wert gehalten, der Dunkelstrom mit Hilfe einer variablen Gleichspannungsquelle kompensiert werden.

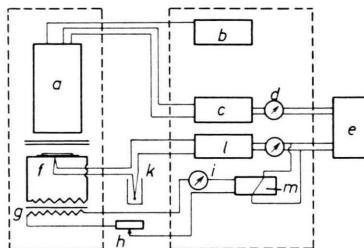


Abb. 6. Die Thermolumineszenzapparatur. a) Photomultiplier, b) Hochspannungsgerät, c) Gleichstromverstärker, d) Meßinstrument, e) Schreiber, f) Heizblech mit Probe, g) Heiztrafo, h) Schieberwiderstand, i) Ampermeter, k) Thermoelement l) Thermospannungsverstärker, m) Relais.

### 2.2. Herstellung der Schichten für die Einzelmessung

Bei den vielen Thermolumineszenzeinzelmessungen war es wünschenswert, das relativ langwierige Abwiegen jeder 5 mg Pulvermenge durch ein einfaches Verfahren zu ersetzen. Abb. 7 zeigt die primitive Vorrichtung. Bringt man die beiden, auf der Außenseite des Plexiglaskörpers gegenüberliegenden, sehr feinen Strichmarken zur Deckung, so kann die Pulverhöhe im Glasröhrchen (Innendurchmesser ca. 1,5 mm) gut reproduzierbar eingestellt werden. Es wird eine Reprodu-

zierbarkeit von ca.  $\pm 0,1$  mg erreicht. Die Vorrichtung erleichtert außerdem das Aufstreuen des Pulvers auf das Heizblech.

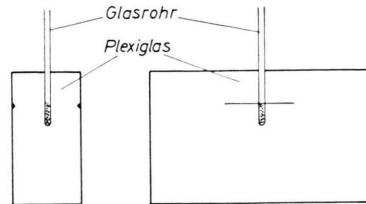


Abb. 7. Vorrichtung zum Abmessen gleicher Pulvermengen.

### 2.3. Das Kurbelgetriebe

Der senkrechte Abstand des Neutronenstrahls vom Mittelpunkt der Calciumfluoridkugel wurde mit ca. 100 mm bei entsprechend zusätzlicher Abschirmung als ausreichend angesehen, um die schon beträchtliche mittlere Kolbengeschwindigkeit von  $2 \text{ m} \cdot \text{sec}^{-1}$  und damit den gesamten Aufwand für die Maschine nicht noch wesentlich zu vergrößern.

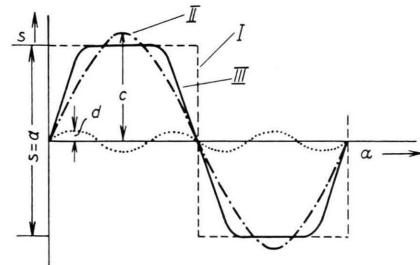


Abb. 8. Weg-Zeit-Diagramm des Kurbelgetriebes.

In Abb. 8 sind die Weg-Zeit-Diagramme I. für den Idealfall [ $s = \sum a_n \cdot \sin(n \alpha t)$ , Transportzeit = 0], II. für den einfachen Kurbeltrieb ( $s = \sin \alpha t$ ) und III. für den Übergang zwischen beiden Funktionen ( $s = c \sin \alpha t + d \sin 3 \alpha t$ ) dargestellt. Soll die Kurve III, neben anderen Möglichkeiten, mit Hilfe eines Getriebes verifiziert werden, so muß der Bewegung eines einfachen Exzentrums  $E_1$  (Radius  $c$ ), die eines zweiten  $E_2$  (Radius  $d$ ) so überlagert werden, daß einer Umdrehung von  $E_1$  drei Umdrehungen von  $E_2$  entsprechen. Dies leistet ein Zahnradpaar (Abb. 9).

Das aus dem Kurbelgetriebe konstruierte Weg-Zeit-Diagramm ist in Abb. 10 dargestellt.

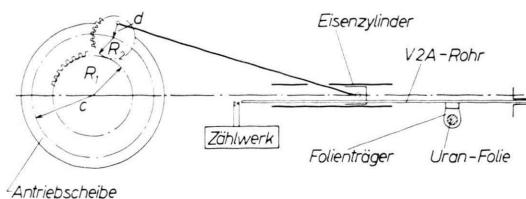


Abb. 9. Das Kurbelgetriebe (schematisch).

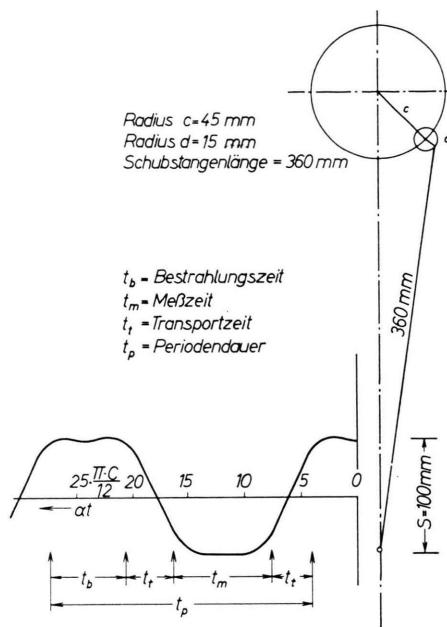


Abb. 10. Weg-Zeit-Diagramm des Kurbelgetriebes.

Das konstruktive Problem bestand vor allem auch in der Lagerung der verschiedenen Räder, da jeder Exzenter für sich ein *Stirnrad* erfordert und außerdem das ruhende Zahnrad zwischen Antriebscheibe und Kurbelstange liegen muß; Abb. 11 gibt einen schematischen Überblick. Die Anordnung des Calciumfluorids ist aus Abb. 2 zu ersehen.

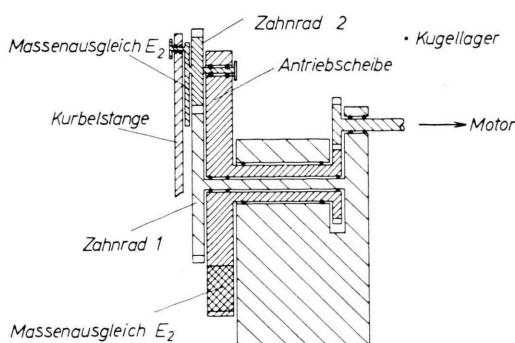


Abb. 11. Lager des Kurbelgetriebes.

#### 2.4. Die Uranfolie

Als Spaltfolien dienten runde ( $1 \text{ cm}^2$ ), ca.  $12 \text{ mg} \cdot \text{cm}^{-2}$  dicke Schichten aus UO<sub>2</sub> (90% angereichert), die mit der in Abb. 12 dargestellten Vorrichtung sedimentiert wurden.

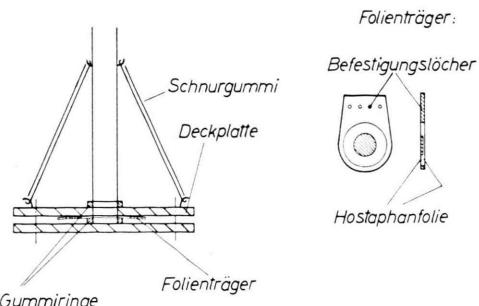


Abb. 12. Vorrichtung zum Sedimentieren der Uranoxyd-schichten.

Die einheitliche Justierung aller Folien (Uran, Gold und P<sup>32</sup>) zum Neutronenstrahl geschah in folgender Weise: Zunächst wurde eine Goldfolie auf einen Träger (Abb. 12) geklebt, dieser in der Halterung des Kurbelgetriebes befestigt und das Getriebe so justiert, daß die Goldfolie den Neutronenstrahl ( $10 \text{ mm } \varnothing$ ) vollständig abdeckte. Eine Lichtquelle, die im Strahlrohr am Reaktor zugewandten Kollimatoren angebracht war, ließ eine genaue Justierung zu (Abb. 13). Die relative Lage der Befestigungslöcher in diesem Träger zu dieser Goldfolie konnte auf alle übrigen Folienträger direkt übertragen werden.

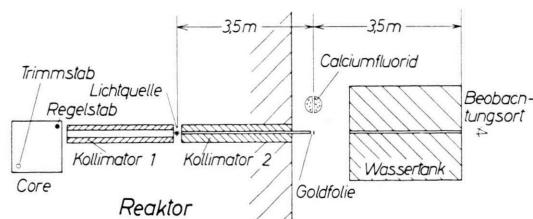


Abb. 13. Justierung der Goldfolie (schematischer Überblick).

#### 2.5. Das Phosphorpräparat

Das P<sup>32</sup>-Präparat wurde mit der in Abb. 14 skizzierten Vorrichtung austrägerfrei, in HCl gelöstem P<sup>32</sup> hergestellt. Unterlage und Abdeckung bestanden aus einer Hostaphanfolie ( $1,4 \text{ mg} \cdot \text{cm}^{-2}$ ).

#### 2.6. Zählapparaturen

Zur Bestimmung der Neutronendosis wurde die Aktivität der Goldfolie absolut in einer  $\beta$ - $\gamma$ -Koinzidenzapparatur von WOLF gemessen. Die Anordnung ist in <sup>13</sup> beschrieben und arbeitet mit einem  $\beta$ - und zwei  $\gamma$ -Methandurchflußzählrohren mit Verstärkern, Hochspannungs- und Zählgeräten.

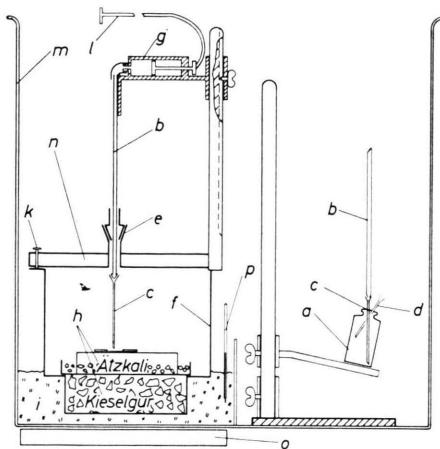


Abb. 14. Apparatur zur Herstellung radioaktiver Präparate. a) Vorratsbehälter, b) Pipette, c) Injektionsnadel, d) Belüftungsadel, e) Schliff, f) Exsikkator, g) Saugkolben, h) Trockenmittel, i) Sandbad, k) Schraube zum Öffnen des Exsikkators, l) biegsame Welle, m) Glasegefäß, n) Plexiglasplatte, o) Heizplatte, p) Thermometer.

Die  $4\pi$ -Zählkammer zur Absoluteichung des  $P^{32}$ -Aliquots ist ebenfalls methandurchströmt. Meßverfahren und Versuchsanordnung sind von ENGELMANN<sup>15</sup> beschrieben.

### 3. Meßergebnisse

#### 3.1. Thermolumineszenzdosimetrie

##### 3.1.1. Die Dosisproportionalität

Ein und dieselbe Schicht (5 mg Calciumfluorid) wurde mit dem  $Sr^{90}$ -Präparat (ca. 800  $\mu$ c mit 1 mm Aluminiumabsorber,  $12 \times 18 \text{ mm}^2$  strahlende Fläche) mit verschiedenen Zeiten  $t_0$  in 1 cm Abstand bestrahlt, die zugehörigen Lichtintensitätswerte  $I_2$  gemessen und der Rotglutanteil subtrahiert, siehe Tab. 1. Es sind Mittelwerte aus je 30 Einzelmessungen; d. h. diese Schicht wurde je 30-mal während der fünf Zeitwerte  $t_0$  bestrahlt. Dieses Verhalten wurde an mehreren Schichten geprüft.

$t_0$ (sec)	10	30	100	300	1000
$I_2 - I_R$ (Skt.)	195	580	1930	5800	19300

Tab. 1.

##### 3.1.2. Die Reproduzierbarkeit der Schichten

Die Gewichte von zwölf mit der in 2.2. beschriebenen Vorrichtung abgemessenen Pulverportionen

sind aus Tab. 2 zu ersehen. Die Waage hatte eine Genauigkeit von  $\pm 0,005 \text{ mg}$ .

$$G = 5,66; 5,82; 5,65; 5,58; 5,66; 5,78; \\ 5,72; 5,69; 5,74; 5,79; 5,65; 5,71 \text{ mg}$$

Tab. 2. Pulvergewichte. Der Mittelwert ist  $G_{\text{Mittel}} = 5,7 \text{ mg} \pm 5,5\%$ . Die größte Abweichung vom Mittelwert betrug  $\Delta G_{\text{max}} = 0,12 \text{ mg} \triangleq 2\%$ .

Von den zwölf verschiedenen Schichten sind über je 30 Einzelmessungen die Mittelwerte  $I_2 - I_R$  in Tab. 3 angegeben. Dabei war  $t_0 = 30 \text{ sec}$ .

Schicht Nr.	1	2	3	4	5	6
$I_2 - I_R$ (Skt.)	572	579	583	580	585	575
$\Delta I$	-8	-1	+3	0	+6	-6
Schicht Nr.	7	8	9	10	11	12
$I_2 - I_R$ (Skt.)	571	581	588	579	582	581
$\Delta I$	-9	+1	+8	-1	+2	+1

Tab. 3. Mittelwert  $(I_2 - I_R)_{\text{mittel}} = 580 \text{ Skt.} \pm 0,6\%$ ; maximale Abweichung vom Mittelwert  $\Delta I_{\text{max}} = \pm 9 \text{ Skt.} \triangleq 2\%$ .

#### 3.2. Die Eichung der Thermolumineszenzintensität

Die Aktivität des  $P^{32}$ -Präparates ergab sich zu  $9,9 \cdot 10^6 \text{ Imp./sec} \pm 1,3\%$ .

Zur Eichung der Thermolumineszenzintensität wurde die Calciumfluoridkugel mit dem geeichten  $P^{32}$ -Präparat eine Zeit  $t(P^{32}) = 1500 \text{ sec}$  bestrahlt, dann das Pulver gemischt, davon eine 5 mg-Portion auf das Heizblech gestreut und der Lumineszenzwert  $I_1$  gemessen. Anschließend wurde die gleiche unveränderte Schicht mit dem  $Sr^{90}$ -Präparat 30 sec lang (Einheitsdosis) bestrahlt und davon die Lichtintensität  $I_2$  bestimmt. In Tab. 4 sind von 12 solchen Schichten die Werte  $I_1$  abzüglich Rotglut- und Stör-lumineszenzanteil  $I_{S+R}$ , sowie die  $(I_2 - I_R)$ -Werte eingetragen. Es sind Repräsentativwerte, wie sie bei etwa 100 Schichten gefunden wurden. Der Wert  $I_{1, \text{korr}}$  folgt aus der Umrechnung mit dem  $I_2$ -Wert der gleichen Schicht (s. Abschn. 4.2.).

$$I_{1, \text{korr}} = \frac{(I_2 - I_R)_{\text{mittel}}}{I_2 - I_R} (I_1 - I_{S+R}); \\ (I_2 - I_R)_{\text{mittel}} = 580 \text{ Skt.}, I_{S+R} = 170 \text{ Skt.}$$

Aus 100 Schichten ergab sich

$$(I_{1, \text{korr}})_2 = 1265 \text{ Skt.} \pm 2\%.$$

Dieser Wert entspricht einer absorbierten Energie

$$E_{\text{abs}} = 1,14 \cdot 10^{10} \text{ MeV};$$

das heißt,

$$1 \text{ Skt. entspricht } 9,10 \cdot 10^6 \text{ MeV} \pm 1,3\%.$$

<sup>15</sup> R. ENGELMANN, Nukleonik 3, 4 [1961].

Schicht-Nr.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
$I_1$	1390	1500	1655	1420	1450	1440	1250	1550	1510	1195	1370	1330
$I_1 - I_{S+R}$	1220	1330	1585	1250	1280	1270	1080	1380	1340	1025	1200	1160
$I_2 - I_R$	560	580	575	600	580	585	590	615	575	540	555	565
$I_1, \text{korr}$	1260	1330	1600	1210	1280	1260	1060	1300	1350	1100	1250	1190
$\Delta I_1, \text{korr}$	-5	+65	+335	-55	+15	-5	-205	+35	+85	-165	-15	-75

Tab. 4. Eichung der Thermolumineszenzintensität. Maximale Abweichung  $(\Delta I_1, \text{korr})_{\text{max}} = \pm 335 \text{ Skt.} \leq 27\%$ .

### 3.3. Die Meßzeit

Die Calciumfluoridkugel wurde diesmal mit dem P<sup>32</sup>-Präparat bei laufendem Kurbelgetriebe bestrahlt. Die Auswertung erfolgte wie in Abschnitt 3.2. und ergab aus 100 Schichten:

$$(I'_6, \text{korr})_3 = 1291 \text{ Skt.}$$

Mit der Gleichung  $t_M = t_{P^{32}} \cdot I'_1 / I_1$  folgt daraus  $t_M = 1696 \text{ sec}$  und  $b = t_M / t_V = 0,3700 \pm 2\%$ .

### 3.4. Die Anzahl der Spaltungen

#### 3.4.1. Die Goldaktivität

An Stelle des P<sup>32</sup>-Präparats wurde nun eine Goldfolie (36,84 mg, 1 cm<sup>2</sup>) im Kurbelgetriebe befestigt und nach einer Fahrzeit des Reaktors von ca. 100 Stunden mit der Neutronenbestrahlung begonnen. Die Daten am Kurbelgetriebe:  $t_N = 13^h$ ;  $N = 3$  Umdreh./sec. Nach  $t_N = 13^h$  wurde die Goldfolie sofort durch die Uranfolie ersetzt und weiter bestrahlt. Der Reaktor lief dann bis zum *scram* weiter, ohne daß eine wesentliche Änderung am Regelstab notwendig war. Die Aktivität der Goldfolie wurde mit allen Korrekturen<sup>13</sup> mit der  $\beta$ - $\gamma$ -Koinzidenzapparatur nach WOLF bestimmt zu

$$a_{\text{Au}} = \frac{z_{\beta} z_{\delta}}{z_k} = \frac{26532 \cdot 1794}{21,2} \\ = 2,25 \cdot 10^5 \frac{\text{Imp.}}{\text{min}} = 3,74 \cdot 10^3 \frac{\text{Imp.}}{\text{sec}} \pm 1\%.$$

#### 3.4.2. Die Uranfolienbestrahlung

Die Neutronenbestrahlungsdauer für die Spaltfolie ( $t_N$ )<sub>U</sub> = 30<sup>h</sup> lieferte in Vorversuchen einen günstigen Lumineszenzwert  $I_1$ . Durch Abschalten des Reaktors mit *scram* konnte ( $t_b$ )<sub>U</sub> auf  $\pm 0,1\%$  gemessen werden. Nach Abschn. 1.8. folgt dann zusammen mit dem aus der Goldfolie ermittelten Wert  $a_{\text{Au}} = 3,74 \cdot 10^3 \text{ Zerf./sec}$  die Anzahl der Spaltungen zu

$$n = 0,95$$

$$\cdot \frac{G_{\text{Au}} M_{\text{U}} h_{\text{Au}} \sigma_{\text{Au}} (1 - \exp\{-\lambda_{\text{Au}} t_{N, \text{Au}}\}) \exp\{-\lambda_{\text{Au}} t_{W1}\}}{G_{\text{U}} M_{\text{Au}} h_{\text{U}} \sigma_{\text{U}} t_{N, \text{U}} a_{\text{Au}}} \\ = 4,97 \cdot 10^9 \pm 2\%$$

mit

$$G_{\text{U}} = 14,180 \text{ mg}; \quad M_{\text{U}} = 235; \quad \sigma_{\text{U}} = 585 \text{ barn}; \\ h_{\text{U}} = 0,897;$$

$$G_{\text{Au}} = 36,84 \text{ mg}; \quad M_{\text{Au}} = 198; \quad \sigma_{\text{Au}} = 96 \text{ barn}; \\ h_{\text{Au}} = 1;$$

$$t_{N, \text{U}} = 1,098 \cdot 10^5 \text{ sec}; \quad t_{W1} = 2^h; \quad a_{\text{Au}} = 3,74 \cdot 10^3 \frac{\text{Zerf.}}{\text{sec}}$$

$$t_{N, \text{Au}} = 4,68 \cdot 10^4 \text{ sec}; \quad a_{\text{Au}} = 3,74 \cdot 10^3 \frac{\text{Imp.}}{\text{sec}}.$$

### 3.5. Die aus der Spaltfolie emittierte $\beta$ -Energie

#### 3.5.1. Die insgesamt im Calciumfluorid absorbierte Energie

Wie schon im letzten Abschnitt erwähnt, wurde sofort nach Beendigung der Goldaktivierung mit der Bestrahlung der Spaltfolie und der „Messung“ der aus ihr emittierten Energie begonnen. Die Bestrahlung dauerte bis zum Abschalten des Reaktors ( $t_N$ )<sub>U</sub> = 1,098 · 10<sup>5</sup> sec. Um die während des Abklingens der Spaltprodukte noch emittierte Energie zu erfassen, lief das Kurbelgetriebe noch  $t = 30^h$  weiter. Damit war die Spaltproduktaktivität nach<sup>3</sup> bis auf 1% abgeklungen.

Der aus 100 Schichten gemessene Mittelwert betrug

$$I_{1, \text{korr}} = 2350 \text{ Skt.} \pm 2\%.$$

#### 3.5.2. Der $\gamma$ -Untergrund der Umgebungsstrahlung, die Störlumineszenz und die Rotglut

Die in 1.5. erwähnten Versuche ergaben für den  $\gamma$ -Untergrund aus der Umgebung des Reaktorstrahlrohres plus Störlumineszenz plus Rotglut einen Intensitätsmittelwert über 90 Einzelmessungen

$$(I_{1, \text{korr}}) = 535 \text{ Skt.} \pm 5\%.$$

Es waren je 30 Einzelmessungen aus der Kugel (Vorversuch)  $I_{1, \text{korr}} = 528$  Skt., den Kontrollproben im Vorversuch:  $I_{1, \text{korr}} = 547$  Skt. und den Kontrollproben im Hauptversuch:  $I_{1, \text{korr}} = 530$ .

Der Wert ist also noch mit dem Störlumineszenz- und Rotglutanteil behaftet. Diese beiden Anteile zusammen wurden aus den gleichen Versuchen, aber mit Reaktorleistung Null erhalten. Über 45 Einzelmessungen war

$$(I_{1, \text{korr}})_{S+R} = 177 \text{ Skt.}$$

Im Hauptversuch befanden sich diese Kontrollproben außerhalb der Reaktorhalle. 45 Einzelmessungen:

$$(I_{1, \text{korr}})_{S+R} = 171 \text{ Skt.}$$

Der Mittelwert aus den beiden ergibt über 90 Einzelmessungen:

$$(I_{1, \text{korr}})_{S+R} = 174 \text{ Skt.} \pm 3\%.$$

Daraus folgt

$$I_{\gamma_2} = I_{\gamma_2 + S+R} - I_{S+R} = 361 \text{ Skt.} \pm 3\%.$$

### 3.5.3. Bestimmung des $\gamma$ -Energieanteiles der Spaltprodukte

Die Anordnung der Probenvolumina des Calciumfluorids ist aus Abb. 2 zu ersehen. Es sind 1 mm dicke Calciumfluoridschichten mit einem Durchmesser von 10 mm, die voneinander durch je eine Hostaphanfolie getrennt und zu einem Zylinder zusammengeklebt waren. Der gefüllte Zylinder war in  $\text{CaF}_2$ -Pulver eingebettet, um für die Probenvolumina die gleiche Umgebung zu gewährleisten wie im Hauptversuch.

Die Kontrolle der  $\gamma$ -Streustrahlung erfolgte wie in Abschnitt 3.5.2. durch zwei mit Calciumfluoridpulver gefüllte Fläschchen.

Die Laufzeit des Kurbelgetriebes betrug mit Neutronenstrahl  $t_N = 30^h$  und weitere  $30^h$  ohne Neutronenstrahl. Für jedes Probenvolumen wurde dann von je 10 Schichten die Thermolumineszenzintensität ermittelt. Die daraus erhaltenen korrigierten Mittelwerte sind in Abb. 3 über der zugehörigen Schicht aufgetragen; ebenso in Abb. 15.

Aus der Neigung der extrapolierten Geraden (Abb. 3) errechnet sich:

$$\alpha_m = 0,37/11 = 3,36\% \text{ und daraus } \alpha_m/\varrho = 0,021.$$

Fast mit der gleichen Berechtigung könnte eine Steigung von  $0,47/11 = 4,3\%$  angenommen werden entsprechend dem  $\alpha/\varrho = 0,027$ -Wert für die mittlere  $\gamma$ -Energie 1,0 MeV.

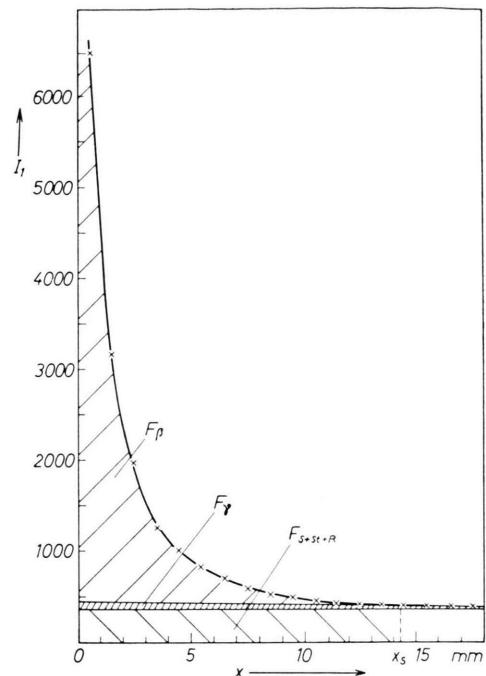


Abb. 15. Die Thermolumineszenzintensität  $I_1$  von Calciumfluorid als Funktion der Schichtdicke.  $F_\beta = \beta$ -Anteil der Spaltproduktaktivität,  $F_\gamma = \gamma$ -Anteil der Spaltproduktaktivität,  $F_{S+St+R}$  = Streustrahlung + Störlumineszenz + Rotglut.

Für die Flächen (Abb. 15) erhält man:

$$\frac{F_\gamma}{F_\beta + F_\gamma} = \frac{4}{52,5} = 7,6\% = \frac{E_\beta + E_\gamma}{E_\gamma}.$$

Schon aus der Unsicherheit von  $\alpha_m$  geht hervor, daß auch die Fläche unter der Geraden nicht mit der erforderlichen Genauigkeit bestimmt werden kann, und daß die Rechnung (Abschn. 2.4.) sicherlich einen zuverlässigeren Wert für das angegebene Verhältnis liefert.

$$\text{Mit } \frac{E_\gamma \text{abs}}{E_\beta \text{abs} + E_\gamma \text{abs}} = 6,1\% \text{ ergibt sich} \\ E_\gamma = 0,061 \cdot (E_\beta + E_\gamma) = 0,061 E_{\beta+\gamma}, \\ E_\beta = E_{\beta+\gamma} - E_\gamma = 0,939 E_{\beta+\gamma}.$$

### 3.5.4. Die nach Versuchsende noch emittierte $\beta$ -Energie

Bisher blieb der Anteil der  $\beta$ -Energie  $\eta_{\beta 2}$  unberücksichtigt, der noch nach Versuchsende emittiert wird. Dieser kann aus den gut bekannten Daten für die langlebigen Spaltprodukte berechnet werden.

$\beta$  = Zahl der  $\beta$ -Teilchen pro Spalt  $\eta_{\beta 2} = \beta E$  mit  $E$  = mittlere Energie dieser  $\beta$ -Teilchen.

Nach KNABE und PUTMAN<sup>16</sup> ist die  $\beta$ -Aktivität pro Spaltung zur Zeit  $t$  nach Ende der Bestrahlung gegeben durch

$$\beta(t) = 1,2 \cdot t^{-1,14}$$

und die Anzahl der  $\beta$ -Teilchen pro Spaltung von  $t = 1^h$  bis  $t = \infty$   $\beta = 2,59$   $\beta$ -Teilchen. Darin ist aber auch die Anzahl enthalten, die zwischen Bestrahlungs- und Versuchsende zerfallen sind und nicht zu  $\eta_{\beta^2}$  beitragen. Diese Anzahl ist

$$\int_{1^h}^{\frac{1}{2}(30+60)^h} \beta(t) dt = \frac{1,2}{0,14} t^{-0,14} \Big|_{45^h}^{1^h} = 1,13.$$

$$\beta = 2,59 - 1,13 = 1,46 \frac{\beta\text{-Teilchen}}{\text{Spaltung}}.$$

Zur Bestimmung der mittleren Energie der  $\beta$ -Teilchen sollen nur die Spaltprodukte berücksichtigt werden, deren Aktivität nach der Abklingzeit  $T = 30^h$  noch größer als 2% des Anfangswertes ist.

$$\frac{a}{a_0} = \frac{\exp\{-\lambda_i T\}}{\lambda_i T} = 2\%.$$

Dies ist erfüllt für  $\lambda_i T = 3$  und damit  $\tau > 6,9^h$ .

Nimmt man die bekannten Maximalenergien der entsprechenden Spaltprodukte, so kann man daraus den Mittelwert der maximalen Energie bestimmen zu

$$\bar{E}_\beta \text{ max} = 0,81 \text{ MeV}$$

und mit  $\bar{E}_\beta = 0,33 \cdot \bar{E}_\beta \text{ max} = 0,26 \text{ MeV}$ ,

$$\eta_{\beta^2} = \beta \bar{E}_\beta = 0,38 \text{ MeV/Spaltung} \pm 5\%.$$

### 3.6. Zusammenfassung der Meßwerte

Der Mittelwert für die insgesamt absorbierte Energie einschließlich Rotglut und Störlumineszenz ergab sich zu

$$(I_{1, \text{korr}})_{\beta+\gamma_1+\gamma_2+S+R} = 2350 \text{ Skt.} \pm 2\%.$$

Der Mittelwert für den  $\gamma$ -Untergrund + Störlumineszenz + Rotglut:

$$(I_{1, \text{korr}})_{\gamma_2+S+R} = 535 \text{ Skt.} \pm 3\%,$$

damit wird

$$(I_{1, \text{korr}})_{\beta+\gamma_1} = 1815 \text{ Skt.} \pm 3\%,$$

$$\text{und } (I_{1, \text{korr}})_\beta = 0,939 (I_{1, \text{korr}})_{\beta+\gamma_1} = 1704 \text{ Skt.} \pm 3,5\%.$$

Nach Abschnitt 3.2. entspricht diesem Wert eine absorbierte Energie von

$$(E_{\text{abs}})_\beta = D E (I_{1, \text{korr}})_\beta = 9,10 \cdot 10^6 \cdot 1704 = 1,550 \cdot 10^{10} \text{ MeV} \pm 3\%$$

<sup>16</sup> W. E. KNABE u. R. E. PUTMANN, APEX-448 [1958].

und nach 1.3.

$$(E_{\text{em}})_\beta = \frac{t_V}{t_M} (E_{\text{abs}})_\beta = \frac{1,550 \cdot 10^{10}}{0,3770} = 4,11 \cdot 10^{10} \text{ MeV} \pm 3\%,$$

mit 3.3.  $t_V/t_M = 1/0,3770$ .

Schließlich ist nach 3.4.2.:  $n = 4,97 \cdot 10^9$  Spaltungen  $\pm 2\%$  und damit

$$\eta_{\beta 1} = E_\beta/n = 8,27 \text{ MeV/Spaltung} \pm 4\%$$

plus dem Anteil der langlebigen Komponenten  $\eta_{\beta 2}$ :

$$\eta_\beta = 8,27 + 0,38 = 8,65 \text{ MeV/Spaltung} = 8,6 \pm 4\% \text{ MeV/Spaltung.}$$

## 4. Diskussion

Ein wesentlicher Teil der Diskussion wurde bereits bei der Besprechung der Meßmethoden vorweggenommen. Im folgenden soll noch auf die Meßergebnisse und ihre Schwankungen eingegangen werden.

Die von LUCHNER<sup>4</sup> gefundene Proportionalität zwischen Dosis und Thermolumineszenz konnte nicht direkt übernommen werden, weil dort einerseits die Lichtsumme<sup>17</sup> als Meßgröße diente und andererseits der *Betrag* der Lichtsumme auf die in einer *Sättigungsschicht* absorbierten  $\beta$ -Energie bezogen wurde; d. h. vom Material her gesehen wird der Proportionalitätsbereich zu erheblich größeren Energiewerten reichen, als es die Lichtsumme aus verschiedenen stark angeregten Pulverkörnern angibt.

In der vorliegenden Arbeit wurde darum der Proportionalitätsbereich an einer 5 mg-Einkornsicht untersucht und bei den Messungen mit der Spaltfolie nur darauf geachtet, daß kein Lumineszenzintensitätswert aus einer der Spaltfolie (Phosphorpräparat) unmittelbar benachbarten Einkornsicht (vgl. 3.6.), den in Abschn. 3.1. ermittelten Proportionalitätsbereich überschritt. Bei dieser Relativmessung kann natürlich über den Absolutbetrag der absorbierten Energie nichts ausgesagt werden.

Betrachtet man in Tab. 1 die 30 Messungen für  $t_0 = 30$  sec bei ein und derselben Schicht, so liegt die maximale Abweichung bei  $\Delta I_2 = \pm 25$  Skt.; was mit einem Fehler in der Bestrahlungszeit von etwa  $\pm 0,5$  sec (entsprechend  $\Delta t = 12$  Skt.), mit Rotglut-schwankungen von  $\Delta I = \pm 8$  Skt. und mit Schwankungen in der Aufheizzeit  $\pm 0,3$  sec (entsprechend  $\Delta t = 5$  Skt.) erklärt werden kann.

<sup>17</sup> Lichtsumme =  $\int I dT$ .

Dieser Fehler wird sich über eine große Anzahl von Messungen herausmitteln. Dasselbe gilt auch für die Schwankung in der Pulvermenge bei verschiedenen Schichten  $\Delta G = 2\%$  in Tab. 2, die sich den oben genannten Schwankungen überlagern. Für verschiedene Schichten ist darum  $\Delta I_{2\text{max}}$  größer. Die gleiche maximale Abweichung sollte nun auch bei den  $I_1$ -Werten auftreten, bei denen die Schichten aus einer insgesamt bestrahlten und gut gemischten Calciumfluoridmenge (Tab. 3 und 4) entnommen wurden. Daß dies nicht so ist, mag daran liegen, daß einerseits die Pulverkörner nicht in einer idealen Einkornsicht angeordnet sind, daß andererseits der Wärmeübergang ungleichmäßig stattfindet oder aber, daß die Dosisempfindlichkeit der Körner differiert. Diese „Schichtfehler“ wurden entsprechend Abschnitt 3.2. durch die  $I_2$ -Werte ermittelt und damit die jeweiligen  $I_1$ -Werte korrigiert. Dabei liegen ca. 80% aller  $I_1$ -Werte wieder innerhalb der oben geforderten Grenzen. Die restlichen 20% können durch die nicht ganz homogene Mischung der angeregten Gesamt-pulvermenge verstanden werden. Dafür spricht, daß der Mittelwert dieser mit einem größeren  $\Delta I_1$  behafteten Intensitätswerte wieder in dem erwarteten Bereich liegt, d. h. die  $I_1$ -Werte geben die wirklich absorbierte Energie wieder. Zu beachten ist, daß der Störlumineszenzanteil vor der Korrektur von  $I_1$  zu subtrahieren ist, da er bei der Messung der „Einheitsdosis“ der gleichen Schicht nicht mehr auftritt.

Der Vorzug eines Kurbelgetriebes zur Bewegung der Uranfolie liegt gegenüber anderen Methoden (z. B. magnetische Auslenkung) darin, daß Schwankungen innerhalb einer Periode sehr gering sind und daß deshalb das entscheidende Verhältnis  $t_M/t_V$  von Drehzahlenschwankungen nicht berührt wird.

Im ganzen gesehen schien es besser, nur integrale Meßwerte heranzuziehen. Dies gilt für den Mittelwert der absorbierten Energie, für die Meß- und Bestrahlungszeit, für die Bestimmung der Neutronendosis mit  $\Phi_{\text{eff}} t_N$  statt  $\Phi_{\text{eff}} \sum t_b$  und für die neben der Meßgröße auftretenden Korrekturen. Die z. Tl. beträchtlichen Schwankungen wurden durch Mittelbildung aus sehr vielen Einzelmessungen eliminiert. So konnte die mittlere  $\beta$ -Energie pro Spaltung des  $U^{235}$  aus experimentell gut erfassbaren Größen zusammen mit bereits bekannten gut gesicherten Werten bestimmt werden.

<sup>18</sup> F. C. MAIENSCHEN, R. W. PEELE, W. ZOBEL u. T. A. LOVE, Proc. 2. UN Int. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy **15**, 336 [1958].

Aus dem Wert von  $\eta = 8,6$  MeV folgt für die mittlere Zerfallsenergie ein Wert, der gegenüber dem berechneten zu groß ist. Die Summe aus mittlerer  $\beta$ -Energie ( $8,6 \pm 0,4$ ) MeV, der dazugehörigen Antineutrinoenergie ( $10,8 \pm 0,5$ ) MeV und der mittleren  $\gamma$ -Energie ( $6,6 \pm 0,8$ ) MeV<sup>18</sup> ergibt eine mittlere Zerfallsenergie von ( $26,0 \pm 1$ ) MeV. Demgegenüber liefert die Rechnung<sup>19</sup> einen Wert

$$E = E_s + E_1 = \gamma \cdot [(\Delta p + 0,55) + 0,15]$$

von ( $21,3 \pm 1$ ) MeV, wenn für die Zerfallskettenlänge der berechnete Wert  $\Delta p = 6,1$   $\beta$ -Teilchen pro Spaltung<sup>16</sup> und für die Parabelkonstanten des Energie-Massentals  $\gamma_1 = (0,93 \pm 0,05)$  MeV (leichte Spaltprodukte) und  $\gamma_s = (0,68 \pm 0,04)$  MeV (schwere Spaltprodukte)<sup>19</sup> angenommen wird.

Die Diskrepanz zwischen den beiden Werten kann verschiedene Ursachen haben. Einmal kann die mittlere  $\beta$ -Energie nicht richtig gemessen sein; dies ist relativ unwahrscheinlich, da mögliche Fehlerquellen weitgehend ausgeschaltet werden konnten und zwei weitere unabhängige Meßmethoden<sup>3, 20</sup> innerhalb der Fehlergrenzen den gleichen Wert ergaben. Setzt man andererseits in der obigen Gleichung für die Zerfallskettenlänge statt des berechneten Wertes den gemessenen<sup>19</sup>  $\Delta p = (6,6 \pm 0,9)$ , so erhält man für die gesamte Zerfallsenergie ( $26,2 \pm 1,4$ ) MeV. Schließlich bleiben noch als Fehlerquelle die Parabelkonstanten. Es ist denkbar, daß die parabolische Näherung nur in der Nähe der Talsohle, aber nicht mehr für die sehr instabilen primären Spaltprodukte richtig ist. Eine Klärung dieser Fragen wird erst eine einheitliche Theorie über die Spaltung bringen können.

Herrn Professor Dr. H. MAIER-LEIBNITZ danke ich besonders für sein stets förderndes Interesse an dieser Arbeit, die er nach dem Tod meines verehrten Lehrers, Herrn Professor Dr. M. SCHÖN, in Anwendung der dort begonnenen Arbeit über die Thermolumineszenzdosimetrie angeregt hat; desgleichen danke ich für die Bereitstellung der Institutsmittel.

Der Betriebsleitung des FRM möchte ich für die Unterstützung bei der Durchführung vor allem der Langzeitversuche danken.

Schließlich sei noch den Herren Dr. P. ARMBRUSTER und Dr. H. VOGEL für wertvolle Hinweise bei der abschließenden Diskussion gedankt.

<sup>19</sup> Siehe <sup>3</sup>, S. 289–292.

<sup>20</sup> P. ARMBRUSTER, D. HOVESTADT, H. MEISTER u. H. SPECHT, erscheint demnächst in Nucl. Phys.