

ments führt. Es treten dann Effekte wie die Beschädigung optischer Bauteile oder die Zersetzung des Farbstofflösungsmittels auf, die Lichtintensitäten von mindestens 10^9 W/cm^2 erfordern¹², obwohl nur eine *mittlere* Intensität von 10^7 bis 10^8 W/cm^2 im Resonator festgestellt wird.

¹² F. AUSSENEGG u. P. MÖCKEL, in Vorbereitung.

Auf Grund dieser Gegebenheiten erscheint eine Kombination aus einem aktiven und einem passiven Güteschalter (vgl. Kap. 3, Punkt c) als zweckmäßig, wenn bei einem Laser mit geringer Resonatorlänge außer einer hohen Ausgangsleistung auch die Selektion eines einzigen longitudinalen Mode durch den Farbstoffschalter gewünscht wird.

Das Verhältnis der Flußdichten thermischer und intermediärer Neutronen in der Umgebung von Neutronenquellen im Wasser

H. J. BORTFELDT und M. MATZKE

Mitteilung aus der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt Braunschweig und Berlin

(Z. Naturforsch. 26 a, 1205—1209 [1971]; eingegangen am 22. April 1971)

Measuring the cadmium-ratio as function of the distance from (α, n)-neutron sources in water we found a clearly distinguishable maximum followed by a small decrease with increasing distance. This behaviour can be explained by a calculation in diffusion approximation using special source terms.

1. Einleitung

Zur Ermittlung der Quellstärke von Neutronenquellen nach der Fermischen Wasserbadmethode¹⁻³ muß die räumliche Verteilung der thermischen Neutronenflußdichte nach Westcott $n_{th}^* v_0 = \varphi_{th}$ bekannt sein. Diese wird nach dem sogen. Cadmium-Differenz-Verfahren ermittelt, wozu die Aktivierungs-sonden sowohl ohne als auch mit Cadmium-Abdeckung am gleichen Ort bestrahlt werden. Der Quotient aus den Sättigungsaktivitäten beider Sonden wird Cadmium-Verhältnis genannt.

Wegen der relativ geringen Flußdichten, die von radioaktiven Neutronenquellen (z. B. Ra-Be- oder Am-Be-Quellen) im Wasser erzeugt werden, liefert die Auswertung der Sondenmessung in größeren Abständen von den Quellen besonders für die Cadmium-bedeckten Sonden zu große Unsicherheiten. Man verzichtet deshalb dort meistens auf diese Messung und ermittelt die Flußdichte thermischer Neutronen aus der Sättigungsaktivität der nicht mit Cadmium abgedeckten Sonde und aus einem extrapolierten Wert des Cadmium-Verhältnisses. Dabei wird vorausgesetzt, daß sich in dem betreffenden Bereich das Cadmium-Verhältnis nicht oder nur wenig mit dem Abstand von der Quelle ändert.

Diese Voraussetzung ist im allgemeinen dann gut erfüllt, wenn die mittlere freie Weglänge der primären Neutronen mit Energien von einigen MeV groß ist gegen die Diffusionslänge der thermischen Neutronen. In diesem Fall wird der räumliche Verlauf der Flußdichte der Neutronen im thermischen und im Resonanzbereich für größere Abstände hauptsächlich durch die räumliche Verteilung der Primärneutronen bestimmt. Das Cadmium-Verhältnis sollte in diesem Fall für Abstände von der Neutronenquelle, die groß gegenüber der mittleren freien Weglänge sind, einen konstanten Wert erreichen.

Wir haben im Rahmen von Quellstärkemessungen den Verlauf des Cadmium-Verhältnisses im Wasser für größere Abstände von (α, n)-Neutronenquellen untersucht. Es zeigte sich, daß das Cadmium-Verhältnis mit zunehmender Entfernung zunächst — wie zu erwarten — ansteigt, dann aber für größere Abstände schwach abfällt, bis es schließlich einen konstanten Wert erreicht. Ein solcher Abfall kann nach der einfachen Gruppendiffusionstheorie mit zwei oder drei Energiegruppen nicht erwartet werden, wenn man die Flußdichte φ_1 der Quellneutronen — wie es in der Diffusionstheorie üblich ist — als $\varphi_1 \sim \exp\{-r/L_1\}/r$ ansetzt, wobei r der Abstand von der Quelle und L_1 die Diffusionslänge der pri-

¹ K. E. LARSSON, Ark. Fys. 7, 323 [1954].

² C. PLANTA u. P. HUBER, Helv. Phys. Acta 29, 375 [1956].

³ A. DE TROYER u. G. C. TAVERNIER, Bull. Acad. R. S. Belg. 40, 150 [1954].



mären Neutronen ist. Dagegen läßt sich der Abfall des Cadmium-Verhältnisses für größere Abstände im Rahmen der Diffusionstheorie erklären, wenn – wie in Abschnitt 4 gezeigt wird – eine Verteilung $\varphi_1 \sim \exp\{-\Sigma r\}/r^{(2-\alpha)}$ mit $0 \leq \alpha < 1$ in die Diffusionsgleichung eingesetzt wird.

2. Meßverfahren

Die Messungen wurden an zwei Quelltypen durchgeführt, und zwar an einer Ra-Be-Neutronenquelle (Quellstärke etwa $2 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$) und an einer Anordnung von 8 Am-Be-Neutronenquellen gleicher Ausführung (Quellstärke jeder Quelle etwa $3 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$). Die Am-Be-Quellen waren bei der Messung auf einem Kreis um den jeweiligen Detektor angebracht. Der Radius des Kreises wurde variiert. Als Detektoren dienten bei den Messungen an der Ra-Be-Quelle Goldfolien (Durchmesser 1,6 cm, Dicke etwa $20 \mu\text{m}$), deren Aktivität nach der $4\pi\beta\gamma$ -Koinzidenzmethode ermittelt wurde. Für Abstände oberhalb von 17,5 cm von der Quelle wurde eine Borsonde (aktive Länge etwa 0,6 cm) verwendet. Für die Messungen an den Am-Be-Quellen wurden Goldfolien (Aktivitätsbestimmung nach der $4\pi\beta\gamma$ -Koinzidenzmethode), Indiumfolien (Durchmesser 1,6 cm, Dicke etwa $50 \mu\text{m}$; relative Aktivitätsbestimmung durch Messung der β -Strahlung) sowie für größere Abstände von der Quelle eine Borsonde benutzt. Die Cadmium-Abdeckung war in jedem Fall 0,1 cm dick.

3. Ergebnisse

Nach der Westcott-Darstellung⁴ ergibt sich für den Quotienten aus den Neutronenflußdichten unterhalb (φ_{th}) und oberhalb (φ_i) der Abschneideenergie E_{Cd} des Cadmiums (vgl. z. B.⁵) am Ort r die Beziehung:

$$\varphi_{\text{th}}(r)/\varphi_i(r) = \text{const} (R(r) - F_{\text{Cd}}). \quad (1)$$

Dabei ist die konventionelle thermische Flußdichte durch

$$\varphi_{\text{th}} = \int_0^{E_{\text{Cd}}} \varphi_E(E) \sqrt{\frac{E_0}{E}} dE \quad (2)$$

($E_0 = 0,0253 \text{ eV}$) und in Analogie dazu eine konventionelle intermediäre Flußdichte durch

$$\varphi_i = \int_{E_{\text{Cd}}}^{\infty} \varphi_E(E) \sqrt{\frac{E_0}{E}} dE \quad (3)$$

definiert. $\varphi_E(E)$ ist die spektrale Verteilung der Neutronenflußdichte. Die Cadmium-Abschneideenergie E_{Cd} hängt im wesentlichen von der Dicke der verwendeten Cadmium-Abdeckung ab. $R(r)$ bezeichnet das Cadmium-Verhältnis am betreffenden Ort. Die Abweichung der dimensionslosen Konstanten F_{Cd} von 1 ist hauptsächlich durch die Abschwächung der Resonanzneutronen im Cadmium-Filter bedingt. Nach AXTON⁶ sowie HARGROVE und GEIGER⁷ scheint für Goldfolien von $20 \mu\text{m}$ Dicke bei einer Cadmium-Abdeckung von 0,1 cm der Wert $F_{\text{Cd}} = 1,01$ sichergestellt.

Für Indium-Folien von $50 \mu\text{m}$ Dicke ergibt sich nach der Westcott-Theorie⁴ mit den von PEARLSTEIN und WEINSTOCK⁸ angegebenen Werten für die Resonanzselbstabschirmung und den entsprechenden Westcott-Parametern⁹ $F_{\text{Cd}} = 1,02$. Für Borsondenmessungen wurde mit Hilfe von Cadmium-Abdeckungen verschiedener Dicke in guter Näherung $F_{\text{Cd}} = 1,01$ experimentell bestimmt. Unsicherheiten in F_{Cd} wirken sich auf $\varphi_{\text{th}}(r)/\varphi_i(r)$ nur unwesentlich aus, da für alle Messungen in größeren Abständen von der Quelle $R \gg 1$ ist.

Im konstanten Faktor vor der Klammer in (1) sind u. a. das Resonanzintegral des betreffenden Sondenmaterials sowie Selbstabschirmungsfaktoren für die thermischen und intermediären Neutronen enthalten. Diese Größe kann in dem von uns untersuchten räumlichen Bereich als ortsunabhängig vorausgesetzt werden, da die Form der spektralen Verteilungen der Neutronen im thermischen und intermediären Energiebereich für größere Abstände jeweils ortsunabhängig sind und nur die Amplituden sich unterscheiden¹⁰.

Für diese Abstände ist der relative Verlauf des Cadmium-Verhältnisses für verschiedene Detektormaterialien gleich. Lediglich in unmittelbarer Nachbarschaft der Quelle, in der die intermediäre Flußdichteverteilung, die annähernd proportional zu $1/E$ ist, noch nicht voll ausgebildet ist, kann eine schwache Ortsabhängigkeit bestehen. Diese Tatsache ist jedoch in unserem Fall bedeutungslos, da Geometrieeffekte – bedingt durch die endliche Ausdehnung der Quelle – die Interpretation der Meßwerte in diesem Bereich ohnehin erschweren.

⁴ C. H. WESTCOTT et al., Second Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva 1958, P/202, Vol. 16, p. 70.

⁵ K. H. BECKURTS u. K. WIRTZ, Neutron Physics, Springer-Verlag, Berlin 1964.

⁶ E. J. AXTON, J. Nucl. Energy A 17, 125 [1963].

⁷ C. K. HARGROVE u. K. W. GEIGER, Can. J. Phys. 42, 1593.

⁸ S. PEARLSTEIN u. E. V. WEINSTOCK, Nucl. Sci. Eng. 29, 28 [1967].

⁹ C. H. WESTCOTT, AECL 1101 [1960].

¹⁰ M. J. POOLE, J. Nucl. Energy 5, 325 [1957].

Die Abbildungen 1 bis 4 zeigen die Meßergebnisse. $R(r) - F_{Cd}$ wurde für alle Messungen willkürlich so normiert, daß für $r = 17,5$ cm $R(r) - F_{Cd} = 1$ ist. Es war notwendig, für die Normierung diesen Abstand zu wählen, da die Messungen mit Goldsonden bei der Ra-Be-Neutronenquelle nur bis zu $r =$

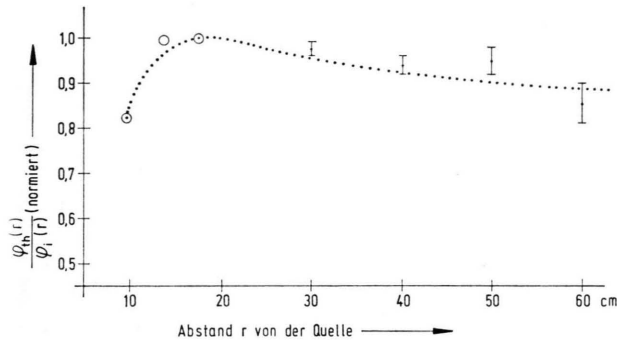


Abb. 1. φ_{th}/φ_i für die Ra-Be-Neutronenquelle. ○ Gold-Folien; ● Borsonde; punktierte Kurve nach Gl. (4).

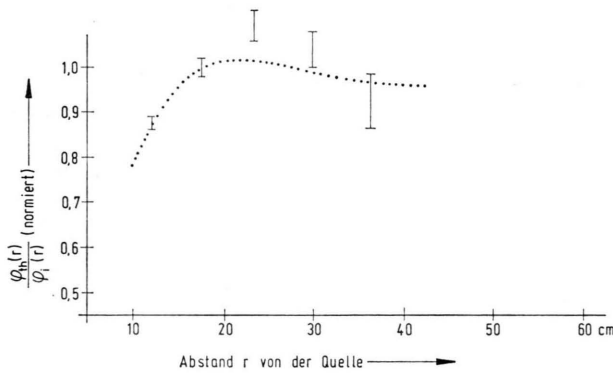


Abb. 2. φ_{th}/φ_i aus den Messungen an den Am-Be-Neutronenquellen mit Goldfolien. Punktierte Kurve nach Gl. (4).

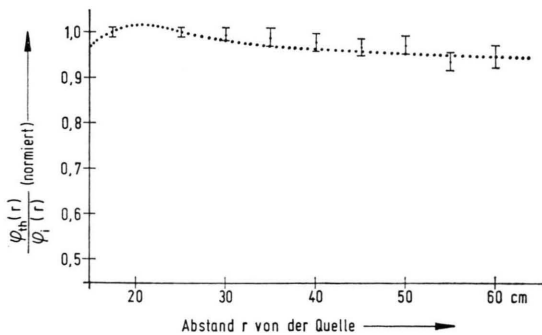


Abb. 3. φ_{th}/φ_i aus den Messungen an den Am-Be-Neutronenquellen mit Indium-Folien. Punktierte Kurve nach Gl. (4).

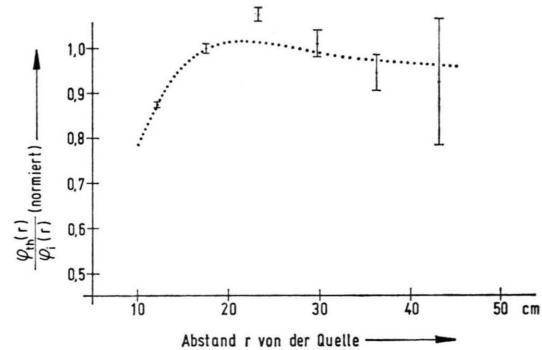


Abb. 4. φ_{th}/φ_i aus den Messungen an den Am-Be-Neutronenquellen mit einer Borsonde. Punktierte Kurve nach Gl. (4).

17,5 cm mit ausreichender Sicherheit durchgeführt werden konnten. In der Meßunsicherheit sind die zufälligen Fehler (Zählstatistik sowie Langzeitschwankungen der Meßapparatur) berücksichtigt.

Die Meßpunkte liegen annähernd auf einer theoretischen Kurve (vgl. Abschnitt 4). Die unterschiedliche Lage der Maxima von $\varphi_{th}(r)/\varphi_i(r)$ bei der Ra-Be-Quelle (etwa bei $r = 15$ cm) und bei der Am-Be-Quelle (etwa bei $r = 25$ cm) ist durch die verschiedenen spektralen Verteilungen der Primärneutronen zu erklären. Die Am-Be-Quelle besitzt ein „härteres“ Spektrum als die Ra-Be-Quelle^{11, 12}, damit ist auch die Wegstrecke der Primärneutronen bis zum Erreichen des thermischen Gleichgewichts bei der Am-Be-Quelle größer als bei der Ra-Be-Quelle. Dieser Sachverhalt läßt sich auch aus dem in Abb. 5 dargestellten Verlauf der intermediären Neutronenflußdichte (gewonnen aus Messungen an mit Cadmium-bedeckten Goldsonden sowie Borson-

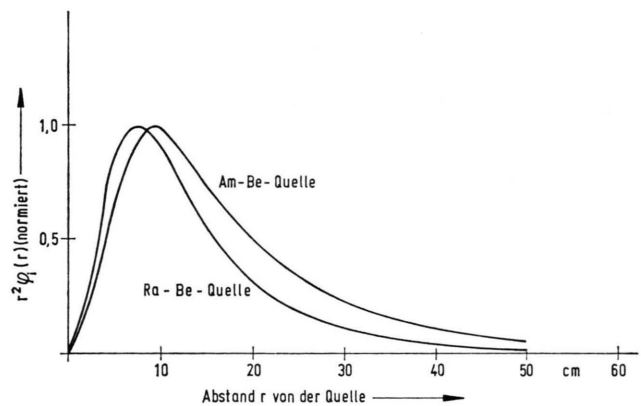


Abb. 5. Intermediäre Neutronenflußdichte multipliziert mit r^2 , normiert auf $(r^2 \varphi_i)_{\max} = 1$.

¹¹ H. ZILL, Z. Naturforsch. **24 a**, 1287 [1969].

¹² H. KLUGE, Z. Naturforsch. **24 a**, 1289 [1969].

den für größere Abstände) erkennen. Das Maximum der mit r^2 multiplizierten intermediären Neutronenflußdichte liegt bei der Am-Be-Quelle bei etwa 9 cm und bei der Ra-Be-Quelle bei etwa 7,5 cm.

Der Abfall des Verhältnisses $\varphi_{th}(r)/\varphi_i(r)$ nach Erreichen des Maximums ist nur schwach ausgeprägt, so daß die eingangs erwähnte Methode, das Cadmium-Verhältnis linear zu extrapolieren, für Abstände größer als etwa 20 cm in guter Näherung berechtigt ist, zumal bei der Bestimmung der thermischen Flußdichte Unsicherheiten im Cadmium-Verhältnis mit dem Gewicht des reziproken Cadmium-Verhältnisses eingehen, für das in diesem Bereich $R \gg 1$ gilt.

4. Diskussion

Wie eingangs erwähnt, kann der Abfall des Quotienten $\varphi_{th}(r)/\varphi_i(r)$ jenseits des Maximums nicht mit einer einfachen Gruppendiffusionstheorie mit zwei oder drei Gruppen erklärt werden, wenn man die Flußdichte $\varphi_1(r)$ der Primärneutronen als $\varphi_1(r) \sim \exp\{-r/L_1\}/r$ ansetzt. Man erhält in diesem Fall einen Verlauf von $\varphi_i(r)$, der in wasserstoffhaltigen Medien schlecht mit den Meßergebnissen übereinstimmt. Es ist jedoch zu erwarten, daß der Verlauf von $\varphi_{th}(r)/\varphi_i(r)$ für größere Abstände richtig wiedergegeben wird, wenn man in einer Zweigruppendiffusionstheorie die gemessene Verteilung der intermediären Neutronen als Quellverteilung der thermischen auffaßt¹⁸. Dann lautet die Lösung der Diffusionsgleichung (vgl. 5)

$$\varphi_{th}(r) = \frac{\xi \Sigma_s}{\Sigma_a} \frac{1}{L} \left\{ \frac{e^{-r/L}}{r} \int_0^r r' dr' \varphi_i(r') \sinh(r'/L) + \frac{\sinh(r/L)}{r} \int_r^\infty r' dr' \varphi_i(r') e^{-r'/L} \right\}, \quad (4)$$

wobei $L = 2,76$ cm (vgl. 5) die Diffusionslänge für thermische Neutronen ist und $\xi \Sigma_s/\Sigma_a = 71$ das Moderatorverhältnis im Wasser bedeutet.

Mit $\varphi_i(r)$ aus Abb. 5 [für größere Abstände wurde $\ln(r^2 \varphi_i(r))$ linear extrapoliert] erhält man mit Hilfe von Gl. (4) durch numerische Integration die in den Abb. 1 bis 4 punktiert eingezeichneten Kurven, die qualitativ dem gemessenen Verlauf von $\varphi_{th}(r)/\varphi_i(r)$ entsprechen. Man kann nicht erwarten, daß mit Gl. (4) der Verlauf von $\varphi_{th}(r)/\varphi_i(r)$ für kleinere Abstände von der Quelle richtig wiedergegeben wird, da in diesem Bereich die Diffusionsnäherung bei der Streuung von Neutronen an Wasserstoff nicht erlaubt ist (s. 5, S. 93). Dies gilt auch noch für den Bereich des Maximums. Dagegen ergibt sich aus Gl. (4) als wichtiges Ergebnis für größere Entfernungen, für die die Diffusionsnäherung erlaubt ist (s. 5, S. 93), der Abfall von $\varphi_{th}(r)/\varphi_i(r)$.

Allgemein hängt die Form von $\varphi_{th}(r)/\varphi_i(r)$ im wesentlichen von zwei Parametern ab: der Diffusionslänge L für thermische Neutronen und einer experimentell eingeführten Größe Σ , die näherungsweise der über das Quellspektrum gemittelten freien Weglänge der Primärneutronen entspricht (vgl. dazu 5, S. 353). Die Flußdichte der intermediären Neutronen läßt sich bei allen radioaktiven Neutronenquellen für größere Abstände r durch ein experimentelles Gesetz der Form

$$\varphi_i(r) = K e^{-\Sigma r} (r_0/r)^{2-\alpha} \quad (5)$$

darstellen¹³⁻¹⁵. Dabei ist K eine Konstante und α ein von WICK¹³ eingeführter Parameter, der in den meisten Fällen klein gegen 1 ist. Der Parameter r_0 dient zur Normierung. Die Werte von α und Σ hängen von der mittleren Energie der Primärneutronen ab (vgl. 16). Unter der Annahme, daß Gl. (5) für Abstände $r > R_0$ gültig ist, erhält man mit Gl. (4) in diesem Bereich:

$$\frac{\varphi_{th}(r)}{\varphi_i(r)} = \frac{\xi \Sigma_s}{\Sigma_a 2 L} \left\{ -B e^{-(1/L - \Sigma) r} r^{(1-\alpha)} + \frac{\Gamma(\alpha+1)}{\alpha} \left[\frac{1}{(\Sigma-1/L)^\alpha} - \frac{1}{(\Sigma+1/L)^\alpha} \right] \exp\{-(1/L - \Sigma) r\} r^{(1-\alpha)} + r U(1, 1 + \alpha, (1/L + \Sigma) r) - r U(1, 1 + \alpha, (\Sigma - 1/L) r) \right\}. \quad (6)$$

Mit

$$B = -2 \int_0^{R_0} \left(\frac{\varphi_i(r')}{K} r_0^{(\alpha-2)} - \frac{e^{-\Sigma r'}}{r'^{(2-\alpha)}} \right) r' \sinh(r'/L) dr' > 0.$$

¹³ G. C. WICK, Phys. Rev. **75**, 738 [1949].

¹⁴ G. HOLTE, Ark. Fys. **2**, 523 [1951]; **3**, 209 [1951]; **6**, 243 [1953].

¹⁵ D. A. KOZHEVNIKOV, J. Nucl. Energ. A/B **19**, 467 [1965].

¹⁶ D. G. FOSTER, Nucl. Sci. Eng. **8**, 148 [1960].

$I(\alpha+1)$, $U(1, 1+\alpha, (1/L+\Sigma) r)$ und $U(1, 1+\alpha, (\Sigma-1/L) r)$ sind die I -Funktion und die konfluenten hypergeometrischen Funktionen (Kummer-Funktionen) in der in ¹⁷ definierten Form.

Zum Beispiel gilt für $\alpha=0$ (vgl. ¹⁸)

$$\frac{\varphi_{th}(r)}{\varphi_i(r)} = \frac{\xi \Sigma_s}{2 L \Sigma_a} \left\{ -B \exp\{-(1/L-\Sigma) r\} r + \ln \left| \frac{\Sigma+1/L}{\Sigma-1/L} \right| \exp\{-(1/L-\Sigma) r\} r \right. \\ \left. + r \exp\{-(1/L-\Sigma) r\} \text{Ei}((1/L-\Sigma) r) + r \exp\{(1/L+\Sigma) r\} E_1((1/L+\Sigma) r) \right\}. \quad (7)$$

Die asymptotische Entwicklung für $r \rightarrow \infty$ ergibt für die beiden letzten Terme in Gl. (6)

$$r [U(1, 1+\alpha, (1/L+\Sigma) r) - U(1, 1+\alpha, (\Sigma-1/L) r)] = \frac{2L}{1-\Sigma^2 L^2} \left(1 + \frac{1-\alpha}{r} \frac{2\Sigma L^2}{1-\Sigma^2 L^2} + O\left(\frac{1}{r^2}\right) \right). \quad (8)$$

Ist $\Sigma L < 1$ [dieser Fall gilt für die üblichen (α, n) -Neutronenquellen und Spaltquellen in Wasser], so wird das Verhalten von $\varphi_{th}(r)/\varphi_i(r)$ für größere Abstände durch den Ausdruck Gl. (8) bestimmt, da die Exponentialfunktion $\exp\{-(1/L-\Sigma) r\}$ in (6) schneller als jede Potenz von $1/r$ verschwindet. $\varphi_{th}(r)/\varphi_i(r)$ muß in diesem Fall für $\alpha < 1$ für wachsende Abstände nach Erreichen eines Maximums abfallen*.

Der Grenzwert für $r \rightarrow \infty$

$$\frac{\varphi_{th}(r)}{\varphi_i(r)} \rightarrow \frac{\xi \Sigma_s}{\Sigma_a} \frac{1}{1-\Sigma^2 L^2} \quad (9)$$

entspricht dem der üblichen Zweigruppentheorie (vgl. ⁵, S. 165).

Für $\Sigma L > 1$ bestimmt die Exponentialfunktion $\exp\{1/L(\Sigma L-1) r\}$ das Verhalten von φ_{th}/φ_i für größere Abstände. Dies gilt für die meisten Photoneutronenquellen im Wasser sowie für die üblichen (α, n) -Neutronenquellen und Spaltquellen in Graphit und schwerem Wasser. φ_{th}/φ_i und damit auch das Cadmium-Verhältnis nehmen dann mit wachsendem Quellabstand zu (vgl. ⁵, S. 165). In thermischen Säulen von Reaktoren wird dies ausgenutzt.

¹⁷ M. ABRAMOWIZ u. J. A. STEGUN, Handbook of Mathematical Functions, Dover Publication, Inc., New York 1965 (first published by NBS).

¹⁸ J. A. DE JUREN u. H. ROSENWASSER, J. Res. NBS **51**, 203 [1953].

* Der Fall $\alpha > 1$, $\Sigma L < 1$ ist bei keinem der bisherigen Experimente gefunden worden (vgl. Zusammenstellung der Zitate ⁵, S. 353).