

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

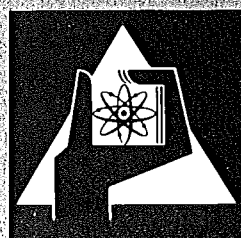
April 1973

KFK 1772

Institut für Angewandte Kernphysik
Projekt Schneller Brüter

Eine Bestimmung des Spaltquerschnitts von ^{235}U für
Neutronen mit Energien zwischen 500 und 1200 keV

F. Käppeler



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1772

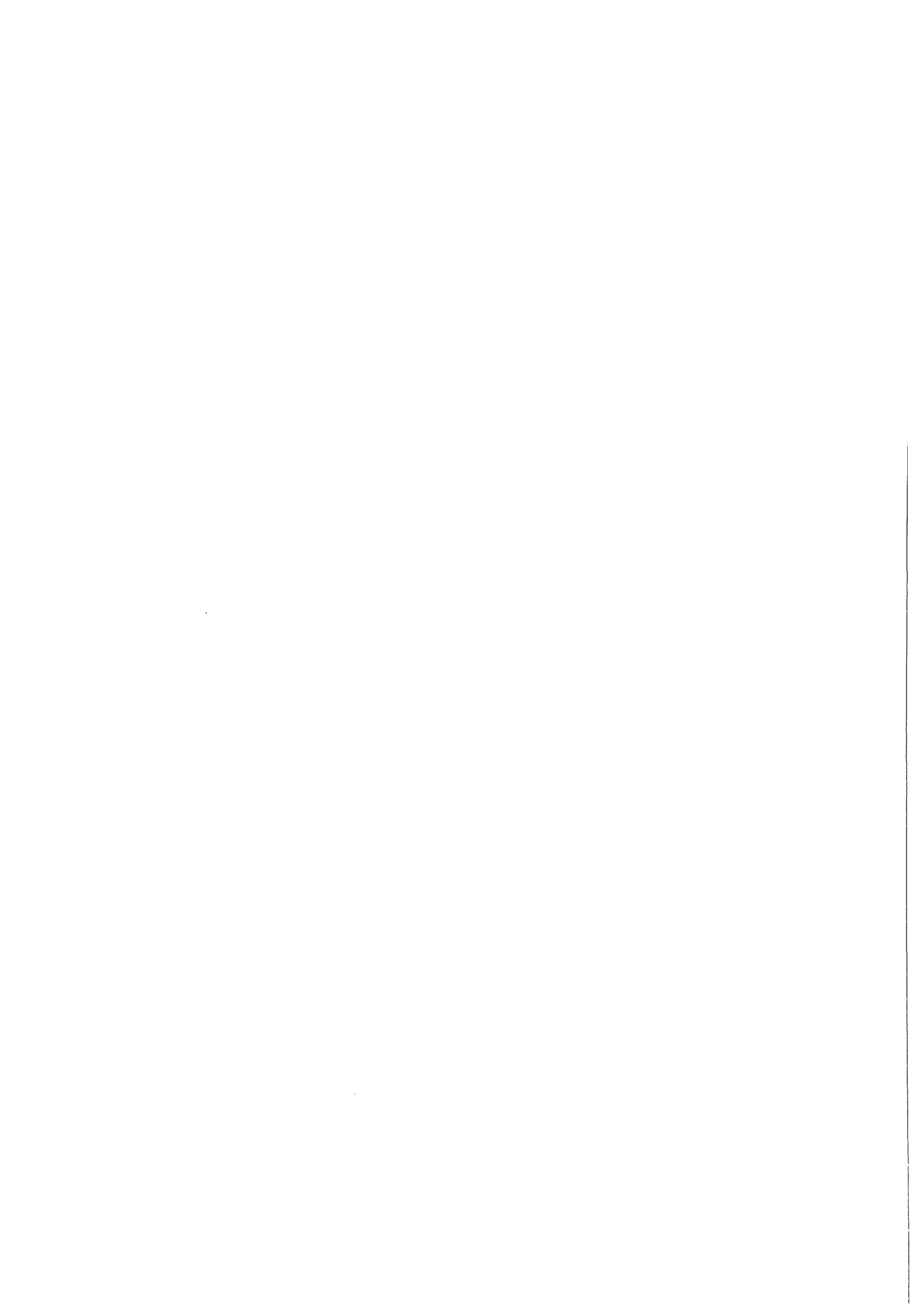
Institut für Angewandte Kernphysik
Projekt Schneller Brüter

Eine Bestimmung des Spaltquerschnitts
von ^{235}U für Neutronen mit Energien
zwischen 500 und 1200 keV^{x)}

von
F. Käppeler

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

^{x)} von der Fakultät für Physik der Universität
(T.H.) Karlsruhe genehmigte Dissertation.



ZUSAMMENFASSUNG

Entsprechend der Bedeutung des Spaltquerschnitts von ^{235}U für die Reaktortechnik sowie als sekundärer Standard wurde im Neutronenenergiebereich von 0.5 bis 1.2 MeV eine Absolutmessung durchgeführt. Mit einer schnell gepulsten Neutronenquelle zur Untergrunddiskriminierung und einer neuentwickelten Methode der Neutronenflußbestimmung konnte der Meßfehler der insgesamt sieben Absolutwerte von σ_f auf ca. 3 % eingeschränkt werden. Weitere zwölf Relativwerte ermöglichten eine detaillierte Beschreibung des Energieverlaufs.

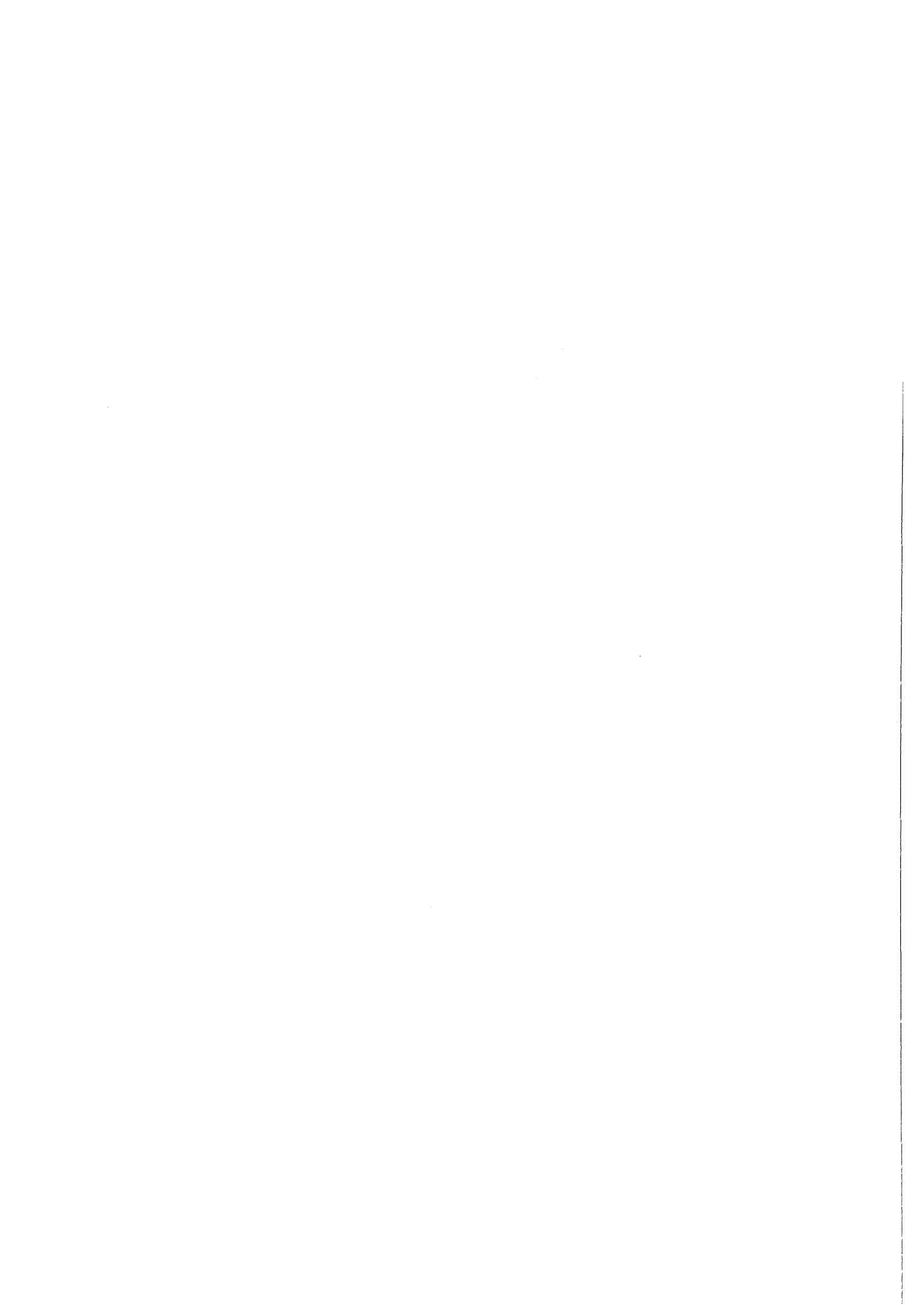
Im Spaltquerschnitt wurde bei 950 keV eine Struktur gefunden, die möglicherweise dem Ende der Energielücke im Compoundkern ^{236}U zugeordnet werden kann. Eine daraus resultierende Deformationsabhängigkeit des gap-Parameters Δ wurde diskutiert.

A Measurement of the Neutron Fission Cross Section of ^{235}U Between 0.5 and 1.2 MeV

ABSTRACT

Due to the importance of the ^{235}U fission cross section for reactor design as well as a secondary standard, an absolute measurement was performed between 0.5 and 1.2 MeV neutron energy. Using a fast pulsed neutron source for background discrimination and a new method for flux determination, the total uncertainty of seven absolute values could be reduced to about 3 %. In addition twelve relative values allowed a detailed description of the cross section shape.

Structure in the fission cross section at about 950 keV was found and is thought to be caused by the end of the energy gap in the compound nucleus ^{236}U . The resulting deformation dependence of the gap parameter Δ is discussed.



INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
1. Einleitung	1
2. Überblick über die bisherigen Arbeiten	6
3. Meßmethode	12
4. Beschreibung der Experimentieranordnung	
4.1 Detektoren	16
4.1.1 Spaltdetektor	16
4.1.2 Protonenrückstoßdetektor	20
4.1.3 Berechnung der Nachweiswahrscheinlichkeit ϵ_H	22
4.2 Proben	24
4.2.1 ^{235}U -Proben	24
4.2.2 Proben für den Protonenrückstoßdetektor	26
4.3 Neutronenquelle	29
4.4 Anordnung von Neutronenquelle und Detektoren	30
4.5 Elektronik	32
5. Durchführung der Messung	36
6. Auswertung	
6.1 Gang der Auswertung	41
6.2 Ermittlung der Bestimmungsgrößen für σ_{fU}	41
6.2.1 Zählraten Z_U und Z_H	41
6.2.2 Ansprechwahrscheinlichkeiten ϵ_U und ϵ_H	42
6.3 Korrekturen	45
6.3.1 Korrektur für Streuneutronen	45
6.3.2 Sonstige Korrekturen	47
6.4 Fehlerabschätzung	48
7. Ergebnis und Diskussion	
7.1 Ergebnis und Vergleich mit früheren Arbeiten	52
7.2 Status des Spaltquerschnitts	56

	Seite
8. Interpretation des Spaltquerschnitts	
8.1 Vorbemerkungen	58
8.2 Neubestimmung der Energielücke am Sattelpunkt	63
8.3 Energielücke und Paarungsenergie	67
9. Zusammenfassung	70
10. Literaturverzeichnis	72

EINLEITUNG

Die genaue Kenntnis des Wirkungsquerschnitts für neutroneninduzierte Spaltung von ^{235}U ist aus folgenden Gründen wichtig:

- 1.) Eine Analyse des Spaltquerschnitts in Abhängigkeit von der Energie der einfallenden Neutronen ermöglicht Aussagen über den Mechanismus der Kernspaltung.
- 2.) Die Berechnung und Auslegung von Reaktoren hängt stark von der Genauigkeit ab, mit welcher der Spaltquerschnitt für das Neutronenspektrum im Reaktor bekannt ist.
- 3.) Der Spaltquerschnitt von ^{235}U ist für Neutronenenergien oberhalb 100 keV als Referenzquerschnitt sehr gut geeignet.

Bei der Erläuterung dieser Punkte soll der Energiebereich zwischen 500 und 1200 keV, der von der vorliegenden Arbeit überdeckt wird, besonders berücksichtigt werden.

Die Entdeckung der Kernspaltung durch Hahn und Strassmann (1) und ihre richtige Erklärung durch Meitner und Frisch (2) war der Anlaß für eine große Zahl von weiteren Arbeiten, die innerhalb eines kurzen Zeitraums ein relativ umfassendes Bild entstehen ließen. Ein wichtiger Teilaspekt der Kernspaltung ist der Spaltquerschnitt und sein Verlauf mit der Neutronenenergie. Bohr und Wheeler (3) unternahmen gleichzeitig mit den ersten experimentellen Arbeiten eine theoretische Behandlung dieses Problems mit Hilfe des Tröpfchenmodells. Die bezüglich des Spaltquerschnitts entwickelten Vorstellungen gingen weit über die damals vorhandenen Meßergebnisse (4,5) hinaus.

Die später durchgeführten Messungen ergaben entgegen den Annahmen von Bohr und Wheeler eine ausgeprägte Resonanzstruktur für Neutronenenergien unterhalb 100 eV. Die daraus abgeleitete kleine Anzahl von Spaltkanälen (6,7,8,9) wurde von A. Bohr (10) so erklärt, daß die Kernspaltung über Sattelpunktzustände abläuft, an denen nahezu die gesamte Anregungsenergie in potentielle Deformationsenergie umgewandelt ist.

An diesen Sattelpunktzuständen ist der Kern also verhältnismäßig "kalt" und die anschließende Kernspaltung verläuft über wenige, gut definierte Reaktionskanäle.

Mit zunehmender Neutronenenergie nimmt sowohl die Niveaudichte als auch die Breite der Resonanzen zu. Dadurch überlappen sich die Resonanzen immer stärker, der Spaltquerschnitt verläuft kontinuierlich und glatt. Ein qualitatives Bild dieses Verhaltens kann mit Hilfe von Reaktionsbreiten Γ_i angegeben werden (11). Sie beschreiben die Wahrscheinlichkeit, mit der ein Compoundkern über einen bestimmten Kanal zerfällt:

$$\sigma_f = \sigma_c \frac{\Gamma_f}{\sum_i \Gamma_i} = \sigma_c \frac{\Gamma_f}{\Gamma_f + \Gamma_n + \Gamma_{n'} + \Gamma_\gamma} \quad (1)$$

(σ_f = Spaltquerschnitt, σ_c = Querschnitt für die Bildung des Compoundkerns, $\Gamma_n, \Gamma_{n'}, \Gamma_\gamma, \Gamma_f$ = Breiten für elastische und inelastische Streuung, für Einfang und Spaltung). Wegen der vielen, sich überlappenden Niveaus werden zur theoretischen Behandlung statistische Methoden angewendet. Man kann annehmen, daß oberhalb der Reaktionsschwelle die Breiten in gleicher Weise zunehmen und da σ_c sich nur langsam ändert, ergibt sich für σ_f im MeV-Bereich ein angenähert konstanter Verlauf. Dieses Verhalten wurde von Bohr und Wheeler auch richtig vorausgesagt. Die bisherigen experimentellen Daten im MeV-Bereich sind aus Gründen, die im nächsten Kapitel diskutiert werden, nicht genau und vollständig genug, um eine differenziertere Interpretation zu ermöglichen.

Die Tatsache, daß die mittlere Zahl $\bar{\nu}$ der pro Spaltung frei werdenden Neutronen größer als 2 ist, machte es möglich, im Reaktor mit Hilfe einer kontrollierten Kettenreaktion aus der Kernspaltung Energie zu erzeugen. Im stationären Zustand muß dabei die Neutronenbilanz ausgeglichen sein. Als Ausdruck für dieses Gleichgewicht gilt die Kritikalitätsbedingung

$$k_{\text{eff}} = 1 \quad (2)$$

Dabei ist

$$k_{\text{eff}} = \frac{\text{Zahl der pro Zeiteinheit im Reaktor erzeugten Neutronen}}{\text{Zahl der pro Zeiteinheit im Reaktor absorbierten und hinausdiffundierten Neutronen}} \quad (3)$$

Die pro Zeiteinheit und Volumenelement in einem mit Uran beschickten Reaktorcore erzeugte Zahl von Neutronen ist

$$Z = \int_0^{\infty} \left[N_5 \bar{\nu}_5 (E) \sigma_f^5 (E) + N_8 \bar{\nu}_8 (E) \sigma_f^8 (E) \right] \phi(r, E) dE; \quad (4)$$

hier bedeuten:

- N = Zahl der spaltbaren Kerne im Volumenelement
- $\bar{\nu}$ = mittlere Zahl der Spaltneutronen pro Spaltung
- σ_f = Spaltquerschnitt
- ϕ = Neutronenfluß im Reaktorcore
- 5,8 = Indizes für ^{235}U bzw. ^{238}U .

Der Beitrag von ^{238}U in Gleichung (4) ist für thermische Reaktoren vernachlässigbar und selbst für schnelle Reaktoren relativ klein, da die Spaltschwelle von ^{238}U mit 1.5 MeV höher liegt als der überwiegende Teil des Reaktorspektrums und ein Reaktor außerdem fast immer mit angereichertem Uran betrieben wird. Aus der Tatsache, daß sich Unsicherheiten im differentiellen Spaltquerschnitt nach Gleichung (4) nahezu proportional auf k_{eff} auswirken, ergibt sich die technologische Bedeutung dieser Größe.

Von thermischen Neutronenenergien bis zu etwa 300 eV wurde der Spaltquerschnitt von ^{235}U mit guter Genauigkeit bestimmt (12). Bei höheren Energien bis zu 1 MeV, wie sie für schnelle Reaktoren typisch sind, ist die Übereinstimmung der Ergebnisse verschiedener Autoren nicht befriedigend. So liegen die Meßwerte von Poenitz (13) zwischen 400 und 700 keV um 10 - 15% tiefer als die der übrigen Autoren (14,15,16,17). Diese Unsicherheit im Spaltquerschnitt wirkt sich besonders bei kleineren Reaktorcores aus (18). Benzi, Cupini und De Hatteis (19) untersuch-

ten mit Monte-Carlo-Rechnungen den Einfluß dieser Unterschiede in σ_f auf kleine, schnell-kritische Anordnungen. Sie fanden Änderungen von k_{eff} bis zu 8 %.

Neben seiner besonderen Bedeutung als Parameter für die Neutronenbilanz im Reaktor spielt der Spaltquerschnitt von ^{235}U auch indirekt als Referenzquerschnitt eine wichtige Rolle. So wurde die überwiegende Mehrzahl der Spaltquerschnitte anderer Isotope relativ zum Spaltquerschnitt von ^{235}U gemessen. Am wichtigsten sind davon die Verhältnisse von ^{233}U , ^{238}U , ^{239}Pu und ^{241}Pu zu ^{235}U (20,21,22). Poenitz und Davey (21,22) geben einen Überblick über die Vielzahl der vorliegenden Ergebnisse. Da eine solche Verhältnismessung ohne Absolutbestimmung des Neutronenflusses ausgeführt werden kann, sind die experimentellen Fehler erheblich kleiner. Ein gut bekannter Spaltquerschnitt von ^{235}U führt somit über die bekannten Verhältnisse auch zu guten Werten für die Spaltquerschnitte anderer Isotope.

Gegenüber dem Wasserstoff (n,p)-Querschnitt, der als einziger absoluter Querschnitt im Bereich oberhalb 300 keV hinreichend gut bekannt ist, hätte der Spaltquerschnitt von ^{235}U als Standard einige Vorteile. Am wesentlichsten ist dabei, daß die bei der Spaltung freiwerdende Energie von ≈ 200 MeV sehr hoch und von der Neutronenenergie praktisch unabhängig ist. Daher ist es leicht möglich, Spaltdetektoren mit ausgezeichneter Diskriminierung gegen jede Art von Untergrund, mit sehr guter Zeitauflösung (< 3 nsec) und energieunabhängiger Ansprechwahrscheinlichkeit zu verwenden. Die Zahl der ^{235}U -Atome in den Proben kann mit hoher Genauigkeit bestimmt und die Proben selbst können jeweils in genau definierter Geometrie angeordnet werden. Diese Vorteile gegenüber Detektoren, welche die H(n,p)-Reaktion benützen, würden sich besonders stark im oberen keV-Bereich auswirken. Mit einer verbesserten Genauigkeit könnte der Spaltquerschnitt von ^{235}U im weiteren Sinn als bisher als sekundärer Standard angewendet werden.

Zusammenfassend kann aus dieser Situation abgeleitet werden, daß es für eine neue Messung des Spaltquerschnitts von ^{235}U drei Gründe gibt

1. Im Bereich oberhalb von 500 keV sind die bisher gemessenen Daten zur Beschreibung des Energieverlaufs von σ_f unzureichend.
2. Zwischen den Absolutwerten verschiedener Autoren, die mit Unsicherheiten von ca. 3 % angegeben werden, bestehen Diskrepanzen von 10 - 15 %.
3. Eine Genauigkeit von 1 - 3 % im Spaltquerschnitt von ^{235}U , wie sie in der RENDA-Liste (23) (Requests for Neutron Data Measurements) in diesem Energiebereich verlangt wird, konnte bisher noch nicht reproduzierbar erreicht werden.

In der vorliegenden Arbeit wird mit einer neuen, unabhängigen Methode versucht, im Energiebereich von 500 bis 1200 keV den Spaltquerschnitt σ_f für ^{235}U mit einer Genauigkeit von ca. 3 % und ausreichender Energieauflösung zu bestimmen.

2. ÜBERBLICK ÜBER DIE BISHERIGEN ARBEITEN

Der Überblick soll sich auf Arbeiten beschränken, die nach 1956 durchgeführt wurden und Meßpunkte zwischen 500 und 1200 keV Neutronenenergie enthalten. Wo Punkte außerhalb dieses Energiebereichs zur Normalisierung verwendet werden, ist eine kurze Beschreibung der betreffenden Messung angefügt.

Bei der Diskussion der vor 1960 ausgeführten Experimente (14,24,25,26) ist zu berücksichtigen, daß die Meßgenauigkeit in manchen Punkten durch die begrenzten experimentellen Möglichkeiten eingeschränkt war. Mit dem Einsatz von Vielkanalanalysatoren, gepulsten Neutronenquellen und Detektoren mit guter Zeitauflösung war es bei den neueren Messungen (13,15,16,17,27,28) möglich, Korrekturen zu vermeiden oder experimentell besser zu erfassen. Daß trotz der dadurch kleiner gewordenen Meßfehler von 3 - 4 % immer noch Diskrepanzen von 10 bis 15 % zwischen verschiedenen Arbeiten auftreten, ist durch die Schwierigkeit der absoluten Neutronenflußbestimmung im oberen keV-Bereich zu erklären.

Bei der Bestimmung von Spaltquerschnitten wird eine bekannte Menge (N = Zahl der Atome) des zu untersuchenden Isotops während der Meßzeit t einem Neutronenfluß ϕ ausgesetzt und die Zahl Z der Spaltereignisse gezählt. Kennt man die Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ des Spaltdetektors, so gilt für dünne Proben unmittelbar

$$Z = \phi \cdot t \cdot N \cdot \epsilon \cdot \sigma_f \quad (5)$$

oder

$$\sigma_f = \frac{Z}{\phi \cdot t \cdot N \cdot \epsilon} \quad (5 \text{ a})$$

Diese vereinfachte Gleichung entspricht einem Gedankenexperiment, bei dem vorausgesetzt wird, daß monochromatische Neutronen ausschließlich mit den Detektoren für Spaltung und Neutronenfluß in Wechselwirkung treten.

In einem realistischen Experiment sind jedoch je nach Meßmethode und Detektoren eine Reihe von Korrekturen notwendig. Anhand der Abb. 1 soll das Problem des Raumuntergrundes erläutert werden.

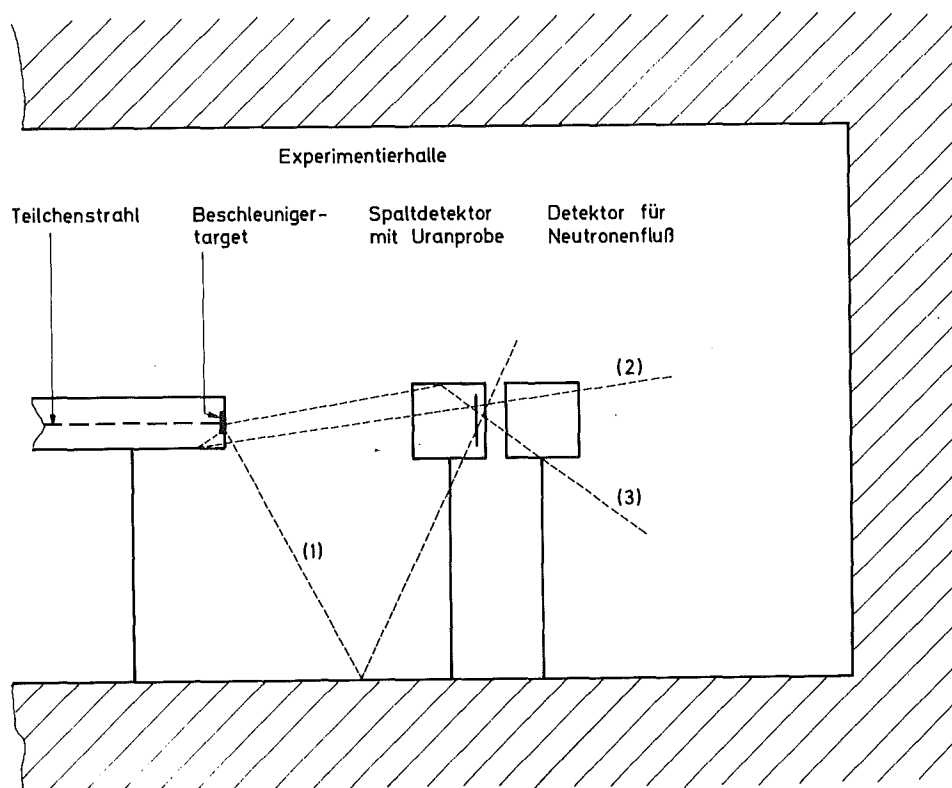


Abb. 1 Schematische Darstellung eines Experiments zur Bestimmung von Spaltquerschnitten

Mit einer Ausnahme wurden alle Experimente an elektrostatischen Beschleunigern ausgeführt. Die Neutronen werden dabei durch Beschuß von leichten Kernen (^2H , ^3H , ^7Li) mit Hilfe der (p,n)- oder (d,n)-Reaktion erzeugt (29). Aufgrund der Reaktionskinematik ist die Neutronenenergie in starkem Maß vom Winkel zwischen Neutronenrichtung und Teilchenstrahl abhängig. Die Energie des Neutrons ist umso kleiner je größer der Winkel ist.

Neutronen kleinerer Energie, die nicht in Vorwärtsrichtung aus dem Target austreten, können jedoch - wie in Abb. 1 angedeutet - nach einem oder mehreren Streuprozessen doch noch in die Zähler gelangen. Dabei ist zwischen zwei Arten von Streuneutronen zu unterscheiden: solche, die in größerer Entfernung vom Target gestreut werden und deshalb bis zum Nachweis sehr viel längere Flugzeiten benötigen als die direkten Neutronen und andere,

die in unmittelbarer Nähe des Targets oder der Detektoren gestreut werden und vergleichbare Flugzeiten haben. Man spricht in diesen Fällen von zeitunabhängigem und zeitabhängigem Untergrund. Dieser von Neutronen kleinerer Energie und zufälliger Richtung verursachte Untergrund wirkt sich in den Detektoren für Spaltung und Neutronenfluß immer in verschiedener Weise aus und führt zu einer Verfälschung der Zählraten.

Die Korrektur dieses Effekts ist bei Messungen mit kontinuierlichem Neutronenfluß (14,16,24,26,28) besonders schwierig und nur unter der Annahme eines ortsunabhängigen Untergrundes möglich. Ein gepulster Neutronenfluß erlaubt dagegen eine genaue Korrektur des zeitunabhängigen und (je nach der erreichten Zeitauflösung) auch des zeitabhängigen Untergrundes. Allerdings wird in den Arbeiten von Poenitz (13) und Szabo et.al. (17) dieser Vorteil der gepulsten Neutronenquelle nur im Fall des Spaltdetektors ausgenutzt, da die verwendeten Detektoren für den Neutronenfluß keine gute Zeitauflösung zulassen.

Abgesehen von der Einteilung in Messungen mit gepulstem und kontinuierlichem Neutronenfluß unterscheiden sich die bisherigen Arbeiten hauptsächlich durch die Art der Flußbestimmung.

Am häufigsten werden Protonenrückstoßzähler verwendet, da der $H(n,p)$ -Querschnitt als einziger Standardquerschnitt im interessierenden Energiebereich hinreichend gut bekannt ist. Allen und Ferguson (14) führten bei 2 Energien mit einem gasgefüllten Protonenrückstoßzähler Absolutmessungen von σ_f durch und benützten diese zur Normierung weiterer mit Hilfe eines long counters relativ gemessener Werte. Auf die gleiche Weise verfuhr Diven (24). Er verwendete jedoch zur Vermeidung von End- und Wandkorrekturen im Zähler einen festen Streuer aus einer dünnen Schicht wasserstoffhaltigen Materials ($120 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ Glycerintristearat) und als Gasfüllung für die Ionisationskammer ein Gemisch aus Argon und CO_2 . Ein weiterer Vorteil dieser Lösung besteht darin, daß Radiator und Spaltprobe unmittelbar hintereinander angeordnet werden können und deshalb genau dem gleichen Neutronenfluß ausgesetzt sind. Als Nachteil ist für beide Methoden zu vermerken, daß bei der notwendigen Extrapolation der Rückstoßprotonenspektren bis zur Impulshöhe null größere Unsicherheiten entstehen.

Verschiedene Autoren versuchen unter Verwendung von radioaktiven Neutronenquellen oder durch Normierung einer Relativmessung die direkte Bestimmung des Neutronenflusses zu vermeiden. In allen Fällen hat ein solches Verfahren jedoch einen größeren Meßfehler zur Folge.

Gorlov et.al. (26) benützten für die Absolutmessung von σ_f bei 270 keV einen long counter, der mit einer Ra-Be-Neutronenquelle bekannter Stärke geeicht war. Bei Dorofeev und Dobrynin (25) wurde eine Photoneutronenquelle vom Spaltdetektor in Form einer kugelförmigen Ionisationskammer umschlossen. Außer der sehr unsicheren Energiezuordnung erschweren in diesem Fall auch Intensitätsprobleme die Auswertung. Im Verlauf ihrer Messung der Spaltquerschnittsverhältnisse verschiedener spaltbarer Isotope versuchten Smirenkin, Nesterov und Bondarenko (15) eine Absolutbestimmung von σ_f durch einen Vergleich der Zählraten von angereichertem ^{235}U und natürlichem Uran bei thermischen Neutronenenergien und bei 2,5 MeV zu erreichen. Der zur Auswertung benötigte Spaltquerschnitt von ^{238}U begrenzt die Genauigkeit jedoch auf ca. 10 %. Poenitz (13) entwickelte für die relative Messung des Neutronenflusses einen "grauen" Detektor, dessen Ansprechwahrscheinlichkeit nur sehr wenig von der Energie abhängt. Dabei werden die Neutronen in einem Wassertank moderiert, an Wasserstoff eingefangen und über die dabei entstehende 2,2 MeV- γ -Strahlung nachgewiesen. Die mit diesem Detektor ausgeführte Relativmessung normiert er bei 30 keV mit einem von Knoll und Poenitz (27) angegebenen Wert für σ_f .

Bei einer weiteren Messung benützte Poenitz (28) die Methode der assoziierten Aktivität zur Bestimmung des Neutronenflusses. Eine innen mit ^{235}U belegte, kugelförmige Ionisationskammer umgab ein ^{51}V -Target. Alle durch die $^{51}\text{V} (p,n) ^{51}\text{Cr}$ -Reaktion erzeugten Neutronen durchquerten auf diese Weise die Kammer. Die anschließende Bestimmung der ^{51}Cr -Aktivität erlaubte die Berechnung des integrierten Neutronenflusses.

Einzelnen gesehen ist in allen Fällen die Unsicherheit der geschilderten Methoden zur Flußmessung relativ groß. Deshalb wurden in den sehr sorgfältigen Arbeiten von White (16) sowie Szabo et.al. (17) mehrere Methoden zur Flußmessung benützt. White verwendete einen gasgefüllten Protonenrückstoßzähler bis zu Neutronenenergien von 2 MeV, einen Protonenrückstoßdetektor mit Radiator und Halbleiterzähler zwischen 1 und 5 MeV und

die Methode der assoziierten Teilchen von 5 bis 14 MeV. Dabei werden die in der ${}^3\text{H} (p,n) {}^3\text{He}$ -Reaktion entstehenden α -Teilchen gezählt. Szabo et.al. arbeiteten im ganzen Bereich zwischen 40 und 1000 keV mit einem long counter mit praktisch konstanter Ansprechwahrscheinlichkeit, die mit 3 verschiedenen Methoden bestimmt wurde. Am genauesten davon war die Manganbad-Technik. Die Neutronen werden in einer Lösung von Mangansulfat in Wasser moderiert und vom Mangan eingefangen. Die spezifische Aktivität des Bades ist nach Beendigung der Messung ein Maß für den Neutronenfluß. Die Absoluteichung geschieht mit genau vermessenen Ra-Be-Quellen, wobei die Unsicherheit auf 1,8 % begrenzt bleibt. Wie bei White wurden außerdem Protonenrückstoßzähler und die Methode der assoziierten Teilchen verwendet. Die Übereinstimmung in den verschiedenen Arten der Flußmessung macht die letzten beiden Messungen in dieser Hinsicht am zuverlässigsten.

Die wichtigsten Merkmale der bisherigen Messungen sind in Tab. 1 zusammengestellt. Die Arbeiten sind in der Reihenfolge ihres zeitlichen Erscheinens aufgeführt. Man entnimmt Tab. 1, daß nur bei 2 Messungen eine gepulste Neutronenquelle verwendet wurde, daß nur 3 von den neueren Arbeiten einen Fehler ≤ 4 % angeben und daß im ganzen Bereich zwischen 500 und 1200 keV nur bei 6 verschiedenen Energien Absolutmessungen von σ_f vorliegen.

Will man aufgrund dieser Situation den Stand der ${}^{235}\text{U}$ -Spaltquerschnittsmessungen verbessern, so muß man mit einer Methode arbeiten, die entsprechend den Folgerungen aus Tab. 1 bestimmte Voraussetzungen erfüllt. Demnach ist es notwendig, σ_f an möglichst vielen Energiepunkten zu messen, wobei die Unsicherheiten 4 % keinesfalls überschreiten dürfen. Die Neutronenflußbestimmung sollte von den bisher verwendeten Methoden unabhängig und auf den $\text{H}(n,p)$ -Querschnitt gestützt sein. Korrekturen an den Zählraten müssen durch Verwendung einer schnell gepulsten Neutronenquelle klein gehalten werden und gut bestimmbar sein.

Inwiefern diese Forderungen durch die vorliegende Arbeit erfüllt sind, soll im nächsten Kapitel diskutiert werden.

Autoren, Jahr	Neutronen Quelle	Spaltdetektor für ^{235}U				Detektor für Neutronenfluß	Meßpunkte zwischen 500 und 1200 keV	Unsicher heit (%)
		Typ	Zeitauf lösung (nsec)	Proben dicke (mg/cm ²)	Anreicher ung (%)			
Allen und Ferguson (14) 1957	VdG, DC	IK	-	0,30	80	Protonenrückstoßzähler und long counter	1 Absolutwert bei 550 keV 3 Relativwerte	3,5
Diven (24) 1957	VdG, DC	IK	-	0,20 - 0,50	-	Protonenrückstoßzähler mit festem Radiator	9 Relativwerte, normiert bei 1,27 MeV	5-6
Dorofeev und Dobrynin (25) 1957	Photo neutronen	IK	-	0,45	-	geeichte Neutronenquelle	1 Relativwert, normiert bei 30 keV	7
Gorlov et. al. (26) 1958	VdG, DC	IK	-	1,10	85	Long counter, geeicht mit Ra-Be-Quelle	3 Relativwerte, normiert bei 270 keV	7
Smirenkin et. al. (15) 1963	VdG, DC	IK	-	1,50	92	Relativ zu long counter, normiert bei therm. Energien		10
White (16) 1965	VdG, DC	IK	-	0,1 - 1,0	93-99	Prot. Rückstoßzähler (2 Arten) Meth. der assoziierten Teilchen	2 Absolutwerte bei 505 und 1000 keV	3
Poenitz (13) 1968	VdG, Puls breite 10 nsec	GS	10	0,08	98,4	Grauer Detektor, keine Absolutmessung	4 Relativwerte normiert bei 30 keV (27)	5
Szabo et. al. (17) 1971	VdG, Puls breite 8 nsec	IK	11	-	-	Long counter, mit 3 Methoden geeicht	5 Werte bei 505, 540, 665, 810, 1010 keV	3-4 *
Poenitz (28) 1971	VdG, DC	IK	-	0,12	99,8	Meth. der assoziierten Aktivität	2 Werte bei 552 und 644 keV	4
VdG = Van-de-Graaff Beschleuniger		DC = kontinuierlicher Neutronenfluß				IK = Ionisationskammer		
						GS = Gasszintillationsdetektor		

Tab. 1 Übersicht über die vorliegenden Arbeiten zur Messung des Spaltquerschnitts von ^{235}U zwischen 500 und 1200 keV Neutronenenergie

3. MESSMETHODE

Um den im letzten Abschnitt aufgestellten Forderungen für eine geeignete Meßmethode zu entsprechen, wird in dieser Arbeit ausschließlich der H(n,p)-Querschnitt als Standard zur Flußmessung benützt. Analog zu Gleichung (5) gilt für die Zählrate in einem solchen Neutronendetektor

$$Z_H = \phi \cdot t \cdot N_H \cdot \sigma_H \cdot \epsilon_H \quad (6)$$

Im folgenden werden H bzw. U als Indizes für alle Größen verwendet, die sich auf den Protonenrückstoßzähler bzw. den Spaltdetektor beziehen. Eliminiert man aus den Gleichungen (5) und (6) den Neutronenfluß ϕ , so erhält man nach Auflösen

$$\sigma_{fU} = \sigma_H \cdot \frac{Z_U}{Z_H} \cdot \frac{N_H}{N_U} \cdot \frac{\epsilon_H}{\epsilon_U} \quad (7)$$

Diese Gleichung liegt der verwendeten Meßmethode zugrunde.

Bei der Diskussion der bisherigen Arbeiten wurden besonders zwei Schwierigkeiten hervorgehoben, nämlich die Verfälschung der Zählraten Z_H und Z_U durch Untergrundeffekte und die Unsicherheiten, die bei der Bestimmung der Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_H von Protonenrückstoßzählern auftreten. Die restlichen Größen in Gleichung (7) N_H , N_U und ϵ_U können dagegen mit ausreichender Genauigkeit bestimmt werden. Der Streuquerschnitt σ_H ist aus der Literatur bekannt.

Protonenrückstoßzähler, wie sie im betrachteten Energiebereich bisher verwendet wurden, lieferten für monochromatische Neutronen der Energie E_n ein Impulshöhenspektrum, wie es in Abb. 2a angedeutet ist. Nur Impulse, die über einer geeigneten Schwelle liegen, können eindeutig einem Rückstoßprozeß zugeordnet werden. Kleinere Impulse werden durch einen Untergrund überlagert, der hauptsächlich von der mit der neutronenerzeugenden Reaktion verbundenen

γ -Strahlung herrührt. Zur Berücksichtigung des unterhalb der Schwelle gebliebenen schraffierten Anteils definiert man die Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ des Detektors als das Verhältnis der Zahl der nachgewiesenen zur Zahl der stattgefundenen Ereignisse.

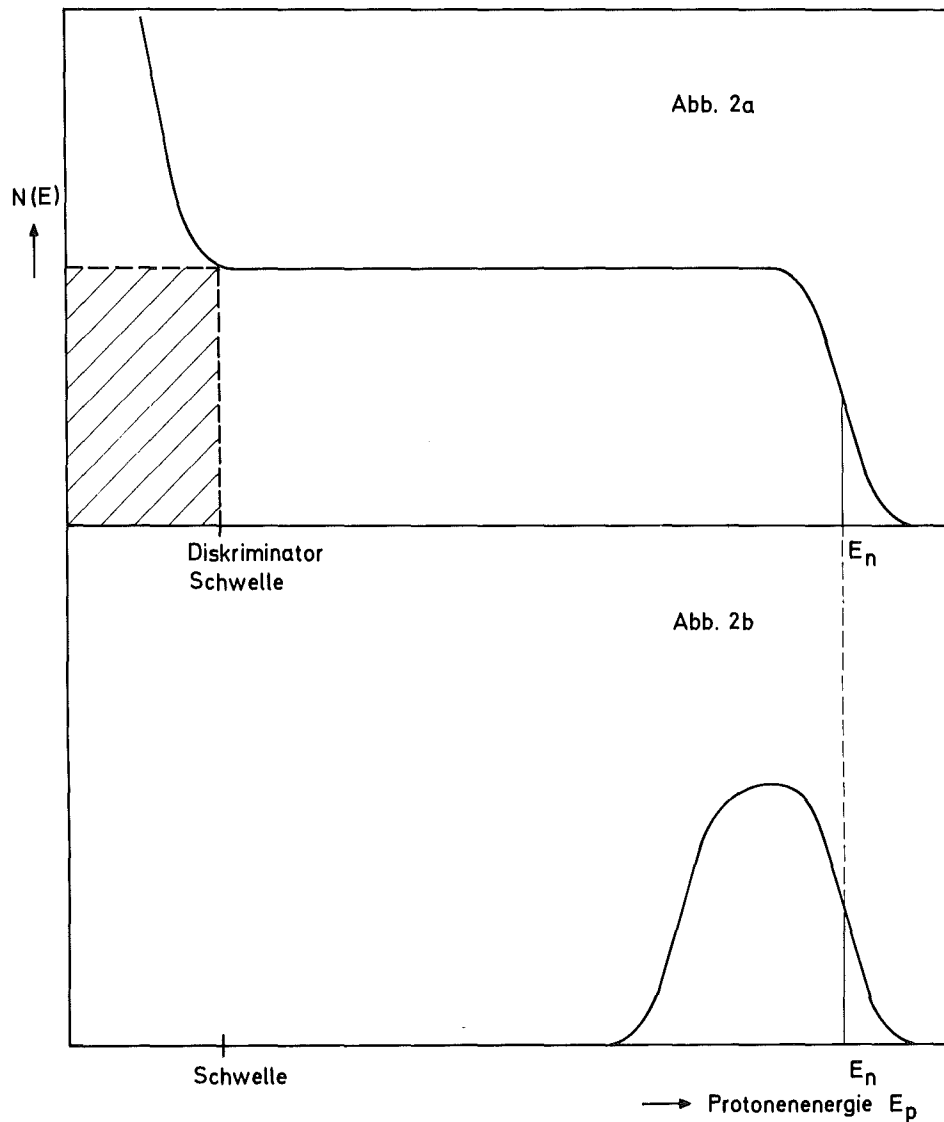


Abb. 2 Impulshöhenverteilung für Protonenrückstoßzähler
a) gasgefüllter Zähler
b) teleskopartiger Zähler

Die Bestimmung von ϵ für den vorliegenden Fall wurde am sorgfältigsten von Parker, White und Webster (30) vorgenommen, die mit Hilfe von Monte-Carlo-Rechnungen das Impulshöhenspektrum theoretisch erzeugt haben. Nach

Anpassung der gerechneten und gemessenen Spektren oberhalb der Schwelle wurde versucht, den fehlenden Teil des Spektrums unterhalb der Schwelle durch die Rechnung zu ersetzen. Da jedoch solche Anpassungen experimentell nicht nachprüfbar sind und gerade im extrapolierten Teil des Spektrums End- und Wandeffekte zum Tragen kommen, bleibt auch diese Art der Extrapolation mit einer gewissen Unsicherheit behaftet. Außerdem ist bei solchen Zählern ϵ sehr empfindlich von der Schwellenstellung abhängig. Ein weiterer Nachteil ist die Energieabhängigkeit von ϵ , da bei höherer oder niedrigerer Neutronenenergie E_n die obere Kante des Spektrums nach rechts oder links verschoben erscheint. Aus diesen Gründen war es nahelegend, eine Anordnung entsprechend Abb. 5 zu wählen, die als Teleskopzähler bekannt ist (31) und für Neutronenenergien oberhalb 2 MeV häufig benutzt wird. Dabei weist man nur solche Protonen nach, die in Vorwärtsrichtung, d.h. unter kleinen Winkeln θ , gestreut werden und gemäß dem Streugesetz

$$E_p = E_n \cdot \cos^2 \theta \quad (8)$$

die höchsten Energien haben. Man erhält mit dieser Anordnung Impulshöhenspektren wie in Abb. 2b skizziert. Die Breite der Verteilung hängt dabei von der Neutronenenergie und über den maximalen Streuwinkel θ_{\max} von der Zählergeometrie ab. Die Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ solcher Teleskopzähler ist von der Neutronenenergie oder von elektronischen Schwellen unabhängig und kann exakt berechnet werden (32,33). Allerdings ist ϵ wesentlich kleiner als bei gasgefüllten Protonenrückstoßzählern. Dieser Umstand fällt jedoch bei der vorliegenden Messung nicht ins Gewicht, da die Meßdauer durch die (noch kleinere) Zählrate im Spaltdetektor bestimmt wird. Entsprechend der zweiten Forderung für eine geeignete Methode zur Bestimmung von σ_f wurde die Messung mit einer schnell gepulsten Neutronenquelle von 1 nsec Pulsbreite und monoenergetischen Neutronen durchgeführt. Dies ermöglichte die Anwendung der Flugzeitmethode zur genauen Bestimmung der Neutronenenergie sowie zur Diskriminierung von Untergrundereignissen.

Über die Laufzeit der praktisch gleichzeitig entstehenden Neutronen kann bei bekanntem Flugweg zwischen Target und Detektor ihre Energie berechnet werden. Auf diese Weise ist es möglich, die Energieverteilung der Neutronen

ΔE anzugeben, welche die Energieauflösung des Experiments bestimmt. Die Flugzeitmethode kann aber auch dazu verwendet werden, solche Ereignisse auszuschließen, welche nicht von unmittelbar aus dem Target kommenden Neutronen (Primärneutronen) ausgelöst werden, sondern von solchen, welche im Raum oder in der Nähe des Targets gestreut wurden (Streuneutronen) und die deshalb später am Ort des Detektors eintreffen.

Die Flugzeitmethode bietet im Fall des Spaltdetektors die einzige Möglichkeit zur Untergrunddiskriminierung, da der Spaltvorgang von der Energie des auslösenden Neutrons praktisch unabhängig ist. Dabei ist gerade für den Spaltdetektor die Diskriminierung der Streuneutronen wichtig, da diese wegen ihres längeren Weges in der Spaltprobe und ihrer kleineren Energie mit größerer Wahrscheinlichkeit Spaltereignisse auslösen als Primärneutronen.

Im Gegensatz zum Spaltdetektor ist der Protonenrückstoßdetektor aufgrund seiner Funktionsweise gegen Streuneutronen nahezu unempfindlich. Die Flugzeitmethode dient in diesem Fall hauptsächlich dazu, den prompten γ -Untergrund vom Beschleunigertarget zu unterdrücken.

4. BESCHREIBUNG DER EXPERIMENTIERANORDNUNG

4.1 DETEKTOREN

4.1.1 SPALTDETEKTOR

Die Eignung von Gasszintillationszählern zum Nachweis geladener Teilchen und besonders von Spaltbruchstücken wird in vielen Arbeiten beschrieben, z.B. in (38,39,40). Die geladenen Teilchen verlieren ihre kinetische Energie durch Wechselwirkungen mit den Hüllenelektronen des Zählergases. Die auf diese Weise ionisierten Gasatome kehren durch Photonenemission mit Abklingzeiten von ca. 1 nsec in den Grundzustand zurück. Das entstehende Licht wird mit Photomultipliern nachgewiesen. Die Vorteile dieses Verfahrens gegenüber dem Nachweis mit organischen Szintillatoren sind die hohe Lichtausbeute für schwere geladene Teilchen und die Proportionalität zwischen Impulshöhe und Teilchenenergie, unabhängig von Masse und Ladung der Teilchen. Das letztere ist vor allem beim Nachweis von Spaltfragmenten zur Diskriminierung des α -Untergrundes wichtig. Hinzu kommt noch die sehr kurze Anstiegszeit der Impulse, sowie die geringe Empfindlichkeit solcher Zähler für γ -Strahlung. Betreibt man den Zähler mit Atmosphärendruck, so ist es möglich, Streukorrekturen durch sehr leichte Bauweise klein zu halten.

Als Zählgas kommen alle Edelgase in Frage, von denen Helium und Xenon die beste Lichtausbeute aufweisen. Helium hat wegen seiner niedrigen Ordnungszahl den Nachteil, daß die spezifische Ionisation klein und daher die mittlere Reichweite der Spaltfragmente mit 15 cm bei 760 Torr (41) sehr groß ist. Beim Xenon dagegen macht sich nachteilig bemerkbar, daß es im Laufe der Zeit durch Spuren von Fremdgasen vergiftet wird. Deshalb scheidet Xenon für solche Anwendungen aus, wo es über längere Zeiträume hinweg auf stabile Verhältnisse ankommt. Am zuverlässigsten bewährte sich ein Gemisch aus 85 % Argon und 15 % Stickstoff, das wegen der geringen Kosten in stetigem Strom durch den Zähler geleitet wurde. Der Zusatz von Stickstoff diente dazu, das vom Argon emittierte Licht, das weitgehend im UV-Bereich liegt, zu größeren Wellenlängen hin zu verschieben (42). Dadurch werden Absorptionsverluste bei der Reflexion an den Wänden und

in den Fenstern verkleinert. Die mittlere Reichweite in diesem Gasgemisch beträgt 2,5 cm für das leichte und 2,0 cm für das schwere Spaltfragment (41,43).

Die Ausführung des Spaltdetektors zeigt Abb. 3.

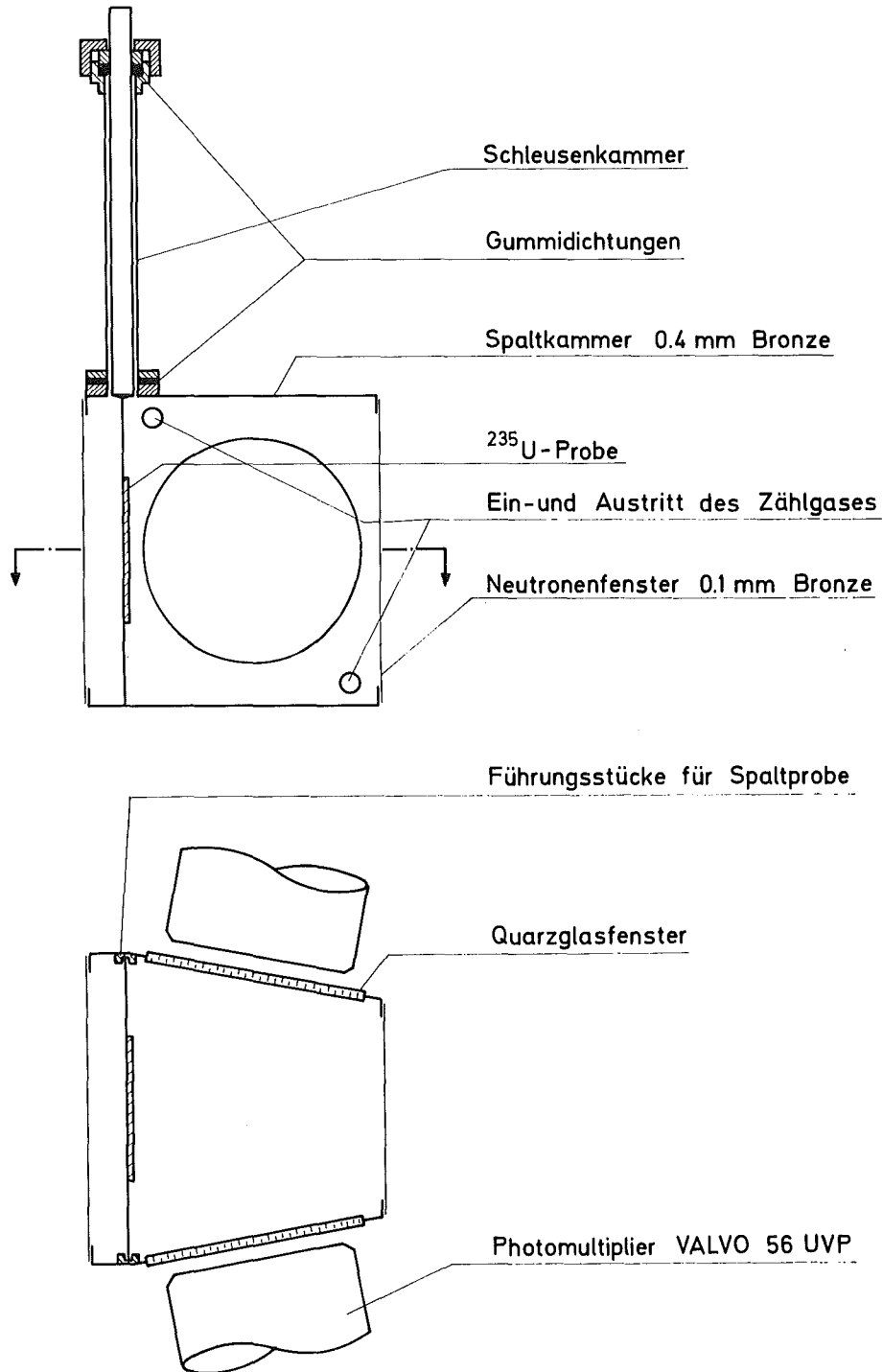


Abb. 3 Seitenansicht und Schnitt durch den Spaltdetektor (vereinfacht).

Wegen der endlichen Reichweite der Spaltbruchstücke ist die ^{235}U -Probe so angeordnet, daß zwischen ihrem Rand und der Kammer ein ausreichender Abstand eingehalten wird. Außerdem wurde darauf geachtet, daß alle größeren Massen mindestens 4 cm von der Probe entfernt sind.

Wie aus früheren Messungen (44) bekannt war, muß im Spaltdetektor auch ein stark zeitkorrelierter Untergrund von (n,x)-Reaktionen der Neutronen mit dem Detektor selbst in Betracht gezogen werden. Dieser Untergrund wurde direkt gemessen, wenn die Probe in die sogenannte Schleusenkammer herausgezogen war. Er war im betrachteten Energieintervall relativ konstant und betrug ungefähr 2 % der Spaltrate. Die Schleusenkammer erleichterte außerdem den Transport und das Auswechseln der Proben.

Die Wände des Detektors waren mit Silber und Aluminium als Reflektoren bedampft. Wegen des schon erwähnten UV-Anteils im Spektrum des emittierten Lichts wurden Quarzglasfenster verwendet. Die Photomultiplier (Valvo 56 UVP) hatten ebenfalls Quarzfenster und waren aufgrund der sehr kleinen Laufzeitschwankungen der Elektronen zwischen Kathode und Anode für die Erfassung der schnellen Szintillationsvorgänge gut geeignet. Die Anstiegszeit der schnellen Ausgangsimpulse betrug 15 nsec. Mit einer ^{252}Cf -Quelle wurde in Vorversuchen die Zeitauflösung des Detektors gemessen. Dabei wurden die vom selben Fragment ausgelösten Impulse in den beiden Photomultipliern als START - und entsprechend verzögert als STOP - Signal auf einen Zeit-zu-Pulshöhenkonverter gegeben. Die Breite des Peaks im Zeitspektrum, d.h. die Zeitauflösung der Anordnung einschließlich Elektronik, war kleiner als 1,2 nsec.

Durch die Verwendung von zwei Multipliern konnten Rauschimpulse unterdrückt werden, indem nur koinzidente Impulse registriert wurden. Ein weiterer Vorteil bestand darin, daß durch die Addition der Impulse beider Multiplier Geometrieeffekte ausgeglichen und somit die Energieauflösung des Detektors erheblich verbessert wurde. Wie in den Impulshöhenspektren der Abb. 4 zu sehen ist, ermöglichte dies eine bessere Diskriminierung gegen die α -Teilchen aus dem natürlichen Zerfall von ^{235}U und als Folge davon eine kleinere Unsicherheit in der Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_{U} . Mit ϵ_{U} soll im folgenden der oberhalb der Schwelle in Abb. 4 liegende Anteil aller Spalt Ereignisse bezeichnet werden.

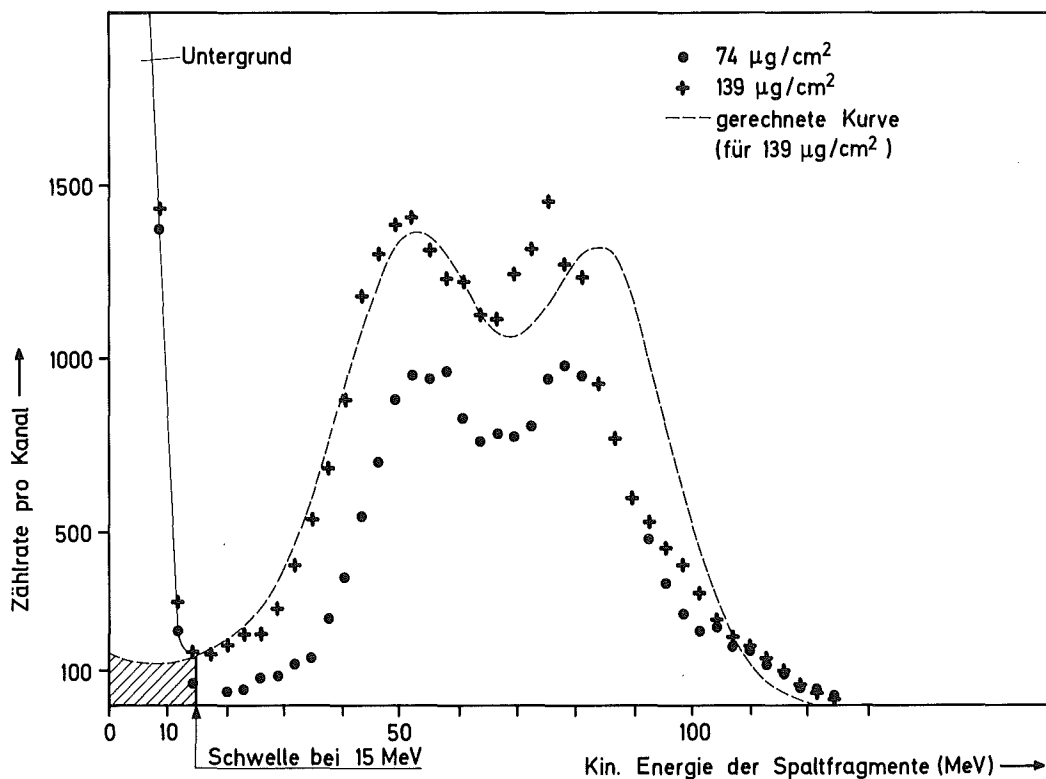


Abb. 4 Impulshöhenspektren für 2 Uranproben.
Die gestrichelte Linie stellt ein berechnetes Spektrum dar.

Für die in Abschnitt 6.2.2 durchgeführte Bestimmung von ϵ_U wurde ergänzend zu den Informationen aus dem Impulshöhenspektrum ein Rechenprogramm entwickelt. Durch Anwendung der Monte-Carlo-Methode bei der Berechnung des Entstehungsortes, der Flugrichtung und der Anfangsenergie eines Fragments war es möglich, die Impulshöhenverteilung in Abhängigkeit von der Proben- dicke und der Auflösung des Detektors zu berechnen. Für die Austrittsenergie der Fragmente aus der Uranschicht wurde eine von Kahn, Harman und Forgue (45) angegebene Beziehung benutzt, die eine empirische Anpassung an die Theorie von Lindhard, Scharff und Schiott (46) über die Reichweite von schweren Ionen darstellt.

$$E = E_0 \left(1 - \frac{r}{\rho}\right)^2 \quad (9)$$

Dabei bedeuten E_0 die Anfangsenergie, ρ die Reichweite und r den Weg des

Fragments in der Probe. Für das leichte und schwere Fragment wurden verschiedene Reichweiten verwendet, entsprechend den Angaben in Ref. (47,48,49,50). Ausgehend von der Energieverteilung der Spaltbruchstücke unmittelbar nach der Spaltung (47), kommt man so nach Berechnung der Energieverluste in der Probe und nach Berücksichtigung der Auflösung des Detektors zu der in Abb. 4 als gestrichelte Linie gezeichneten Verteilung. Als Probendicke wurde für die Rechnung ein Wert von $139 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ angenommen. Die Übereinstimmung zwischen den gemessenen Kurven und der gerechneten Verteilung bestätigt die Brauchbarkeit der Rechnung für die Abschätzung von ϵ_U .

Im oberen Teil der gemessenen Kurven geht die Proportionalität von Energie und Impulshöhe verloren. Die Ursache dafür ist, daß der Spannungsteiler der Photomultiplier für optimale Zeitauflösung ausgelegt wurde. Für die Messung selbst hat dieses Verhalten keine Bedeutung.

4.1.2 PROTONENRÜCKSTOSSDETEKTOR

Der zur Messung des Neutronenflusses entwickelte Protonenrückstoßdetektor arbeitet nach dem Prinzip des Teleskopzählers, bei dem nur die in Vorwärtsrichtung gestreuten Protonen mit den höchsten Energien nachgewiesen werden. Ein solcher Zähler besteht aus einer Schicht wasserstoffhaltigen Materials, dem sogenannten Radiator und zwei oder mehr dahinter angeordneten Detektoren, in denen die Rückstoßprotonen innerhalb eines bestimmten Streuwinkelbereichs nachgewiesen werden. Verlangt man zum Nachweis eines Rückstoßprozesses Koinzidenz zwischen den Detektoren, so kann auf diese Weise der durch direkte Reaktion von Neutronen in den einzelnen Detektoren verursachte Untergrund diskriminiert werden. Der sichere Nachweis in beiden Detektoren setzt jedoch eine relativ große Anfangsenergie der Protonen voraus, weshalb der Einsatz solcher Zähler bisher auf Neutronenenergien oberhalb 2 MeV beschränkt war.

Für die Verwendung dieses Prinzips bei kleineren Energien war es notwendig, eine andere Methode zur Bestimmung des Untergrunds zu finden. Diese Forderung führte zur Entwicklung eines Detektors, wie ihn Abb. 5 in vereinfachter Form zeigt.

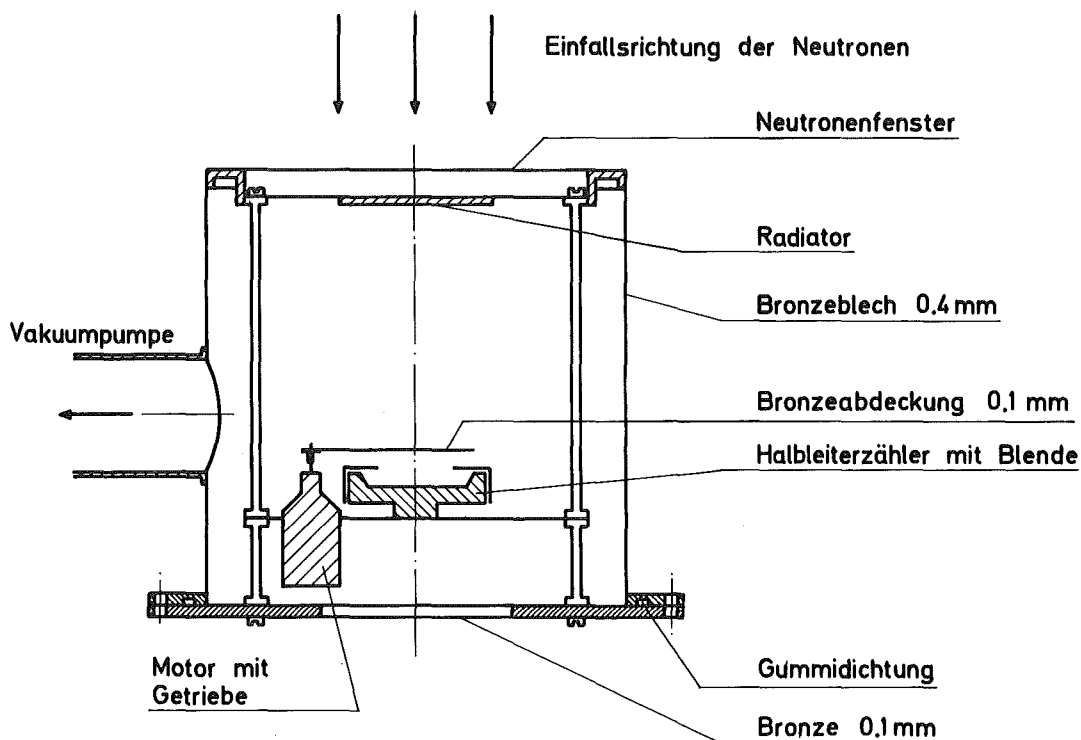


Abb. 5 Schnitt durch den Protonenrückstoßdetektor (vereinfacht).

Einem festen Radiator von 40 mm Durchmesser steht ein Halbleiterzähler zum Nachweis der Rückstoßprotonen gegenüber. Zur direkten Bestimmung des Untergrunds kann der Halbleiterzähler mit einem dünnen Blech abgedeckt werden, welches zwar die Protonen abhält, den Neutronenfluß jedoch nicht merkbar schwächt. In Vorversuchen ohne Radiator konnte bei mehreren Neutronenenergien für die Spektren mit offenem und abgedecktem Halbleiterzähler innerhalb eines statistischen Fehlers von 0,5 % kein Unterschied gemessen werden. Während des Experiments wurde die Abdeckung durch eine mit dem Beschleuniger und der Experimentierelektronik gekoppelte Meßautomatik so gesteuert, daß für beide Stellungen der Neutronenfluß gleich war. Die Meßzeit wurde jeweils dadurch festgelegt, daß der Ionenstrom des Beschleunigers bis zu einem vorgegebenen Wert aufintegriert wurde.

Zum Nachweis der Protonen wurde ein Silizium-Oberflächensperrschichtzähler mit 100 μ Dicke und einer empfindlichen Fläche von 450 mm² verwendet (ORTEC A-030). Um den Untergrund möglichst klein zu halten, wurde der dünnste angebotene Zähler mit 100 μ gewählt. Die Eintrittsseite war mit 40 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ Gold bedampft, die Energieauflösung betrug 30 keV für 5,5 MeV α -Teilchen.

Da der Radiator nur aus einer sehr geringen Menge wasserstoffhaltigen Materials (einige mg) bestand, wurde sorgfältig darauf geachtet, eine Verunreinigung des Zählers mit weiteren wasserstoffhaltigen Substanzen zu vermeiden. So wurden alle Teile des Detektors im Ultraschallbad gereinigt und während des Experiments das Vakuum von $<10^{-4}$ Torr durch eine Kühlfalle mit flüssigem Stickstoff von wasserstoffhaltigen Gasen sauber gehalten. Wie die erwähnten Vorversuche ohne Radiator zeigen, konnten durch diese Maßnahmen systematische Fehler ausgeschlossen werden.

Mit dem Protonenrückstoßdetektor aufgenommene Impulshöhenverteilungen zeigen Abb. 6 und Abb. 12b.

4.1.3 BERECHNUNG DER NACHWEISWAHRSCHEINLICHKEIT ϵ_H

Wie aus Abb. 5 unmittelbar hervorgeht, wird der Bruchteil der im Halbleiterzähler nachgewiesenen Protonen, d.h. ϵ_H , wesentlich kleiner als 1 sein. Die Ansprechwahrscheinlichkeit kann aus der Geometrie des Detektors exakt berechnet werden. Solche Rechnungen führten Bame et.al. (32,33) für spezielle Geometrien durch, die von denen des vorliegenden Experiments erheblich abweichen. Da eine Extrapolation dieser Werte für ϵ_H auf andere Geometrien nur sehr ungenau möglich ist, wurde von F.H. Fröhner ein Rechenprogramm zur Bestimmung von Ansprechwahrscheinlichkeiten in jeder Geometrie entwickelt. Darüber hinaus sollte das Programm die experimentell zu erwartenden Impulshöhenverteilungen berechnen. Deshalb wurde auf die geschlossene Form der Rechnung, wie sie Bame et.al. angewendet haben, verzichtet und die Monte-Carlo-Methode benützt.

Der Radiator wird in ein gleichmäßiges Raster von Streuorten eingeteilt. Nach der Streuung der von einer punktförmigen Quelle ausgehenden Neutronen werden Richtung und Energie der entstehenden Rückstoßprotonen aus der ausgewürfelten Richtung im Schwerpunktsystem berechnet. Um Rechenzeit zu

sparen, beschränkt man sich darauf, die Protonenrichtung in einem Kegel auszuwürfeln, der den Halbleiterzähler enthält. Als Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_H ergibt sich somit das Verhältnis zwischen der Zahl der Treffer und der Versuche, gewichtet mit dem Raumwinkel des Kegels. Die so berechneten Werte für ϵ_H stimmen mit den Werten von Bame et.al. für die von ihnen gewählten Geometrien innerhalb des statistischen Fehlers überein.

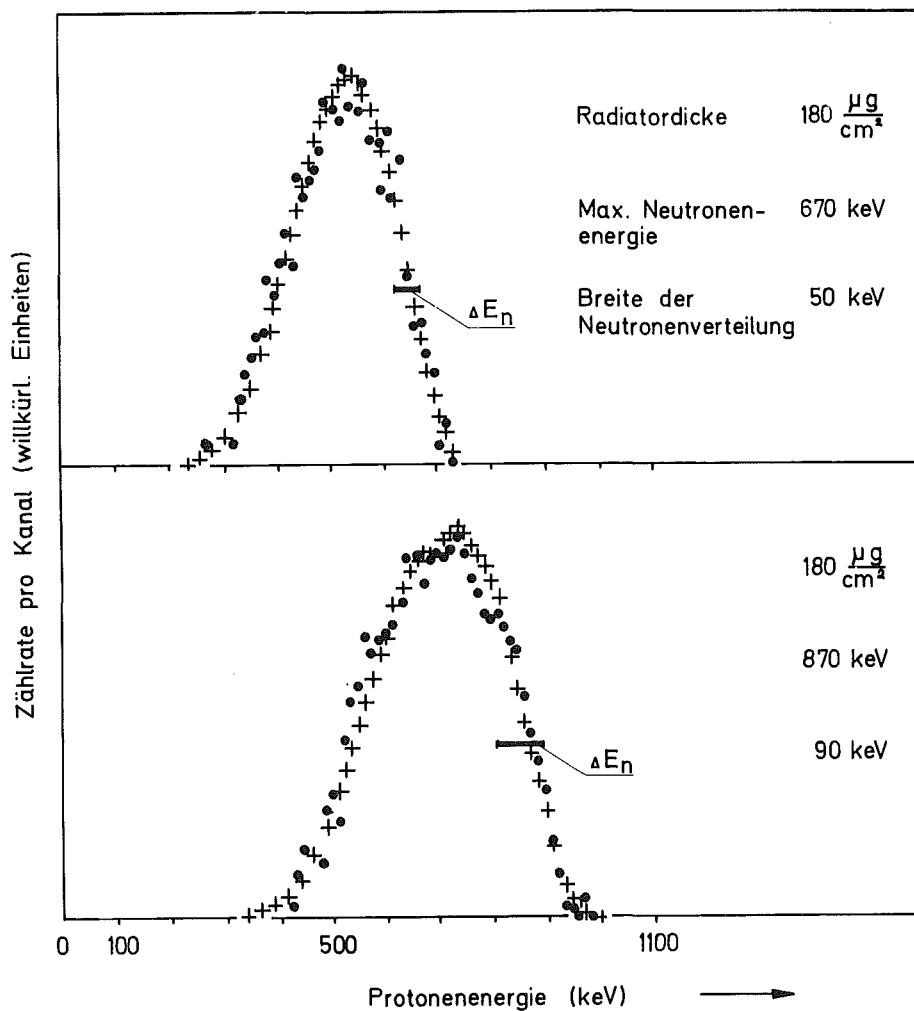


Abb. 6 Gemessene (•) und berechnete (+) Impulshöhenspektren des Protonenrückstoßzählers bei zwei Energien.

Durch Berücksichtigung der Energieverluste, die die Protonen in der Radiatorschicht, wo sie in verschiedenen Tiefen erzeugt werden, und im Eintrittsfenster des Halbleiterzählers erleiden, kann gleichzeitig das Impulshöhenspektrum simuliert werden.

Die dazu notwendigen Werte des differentiellen Energieverlustes dE_p/dx in Abhängigkeit von der Protonenenergie wurden für Stearinsäure, Gold und Silizium den Arbeiten verschiedener Autoren (34,35,36,37) entnommen und im Rechenprogramm durch glatte Kurven angenähert. Die Übereinstimmung zwischen Experiment und Rechnung zeigt Abb. 6.

4.2 PROBEN

4.2.1 ^{235}U -PROBEN

Die Proben bestanden aus einer dünnen Schicht Uranazetat auf einer Trägerfolie aus rostfreiem Stahl. Bei einer mittleren Reichweite der Spaltfragmente in Uranazetat von ungefähr 2 mg/cm^2 mußten die Proben dünn genug sein, damit das Tal zwischen α -Teilchen und Spaltfragmenten im Impulshöhenspektrum nicht aufgrund der Energieverluste in der Schicht aufgefüllt wird. Dadurch ist die Schichtdicke nach oben hin auf ca. $300 \text{ }\mu\text{g/cm}^2$ begrenzt. Die untere Grenze ist durch die Intensität des Neutronenflusses gegeben. Sie lag bei dieser Anordnung bei $50 \text{ }\mu\text{g/cm}^2$. Um systematische Fehler kleinzuhalten, wurden für die Messung vier verschiedene Proben zwischen 74 und $130 \text{ }\mu\text{g/cm}^2$ verwendet.

Hergestellt und analysiert wurden die Proben im Zentralbüro für Kernmessungen von Euratom in Geel/Belgien. Das Ausgangsmaterial bestand aus hochangereichertem ^{235}U , dessen genaue Isotopenzusammensetzung aus massenspektrographischen Bestimmungen bekannt war. Neben $99,501 \pm 0,010 \%$ ^{235}U enthielt es noch $0,166 \%$ ^{234}U , $0,027 \%$ ^{236}U sowie $0,306 \%$ ^{238}U .

Eine wichtige Forderung an die Meßproben war, daß sie sehr gut homogen sein mußten, um nicht durch lokale Schwankungen in der Absorption der Fragmente systematische Fehler in der Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_U zu erzeugen. Diese Homogenität konnte zum einen durch das Herstellungsverfahren nach Lauer und Verdingh (51) mit Abweichungen in der Schichtdicke von weniger als 1% , zum anderen durch die Verwendung polierter Trägerbleche aus Edelstahl mit einer Rauhtiefe von weniger als $0,5 \text{ }\mu\text{m}$ (52) erreicht werden.

Es wurde darauf verzichtet, die Uranazetatproben im heißen Wasserstoffstrom in U_3O_8 überzuführen, obwohl diese Verbindung einen um 20% höheren

Urangehalt aufweist. Das dunkelgraue Uranoxyd hat nämlich gegenüber dem hellgelben Uranazetat den Nachteil, daß es einen erheblichen Teil des durch Szintillation erzeugten Lichts absorbiert. Dies fällt umso mehr ins Gewicht, als die Spaltfragmente wegen ihrer hohen Anfangsladung von im Mittel 20 Elementarladungen im ersten Teil ihrer Bahn die höchste Ionisationsdichte erzeugen.

Für die Massenbestimmung wurden zwei Verfahren angewendet, Die Bestimmung der α -Aktivität der Proben, die mit der Methode von Spagnol und Lerch (53) auf 0,3 % genau ausgeführt wurde, erlaubt es, bei bekannter spezifischer Aktivität des Probenmaterials die gesamte Uranmenge mit einer Unsicherheit von ungefähr 0,7 % zu berechnen. Mit dieser zerstörungsfreien Methode war es auch möglich, vor der destruktiven Analyse eventuelle, durch den Transport bedingte Substanzverluste der Proben festzustellen. Die Kontrollmessungen ergaben jedoch keine merklichen Differenzen gegenüber den unmittelbar nach der Herstellung der Proben durchgeführten Messungen.

Die endgültige Analyse mit einer Unsicherheit von 0,5 % wurde nach der von de Bièvre beschriebenen Isotopenverdünnungsmethode vorgenommen(54). Die Angaben über die während der Messung verwendeten Proben sind in Tabelle 2 zusammengestellt.

Dicke des Probenträgers mm	Probendicke $\mu\text{g}/\text{cm}^2$	Gesamtmenge mg Uran	Unsicherheit %
0,25	139	1,744	0.5
0,25	95	1,194	0.5
0,25	74	0,933	0.5
0,9	100	1,265	0.5
Isotopenzusammensetzung in %			
^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U
0.166	99,501 \pm 0,010	0,027	0,306

Tab. 2 Masse und Isotopenzusammensetzung der ^{235}U -Proben

4.2.2 PROBEN FÜR DEN PROTONENRÜCKSTOSSDETEKTOR

Als Radiatoren für den Protonenrückstoßdetektor sind Substanzen vom Typ $(\text{CH}_2)_x$ wegen ihres hohen Wasserstoffanteils gut geeignet. Die Schichten müssen dünn genug sein, um größere Energieverluste der Rückstoßprotonen in der Radiatorschicht zu vermeiden. Bei den verwendeten für Rückstoßdetektoren relativ niedrigen Neutronenenergien konnten deshalb keine selbsttragenden Kunststoffolien verwendet werden.

Dagegen war es leicht möglich, durch Verdampfen des Probenmaterials gute Radiatorschichten herzustellen. Als Probenträger wurden dieselben, polierten Bleche aus Edelstahl verwendet wie für die ^{235}U -Proben. Als geeignete Substanzen wurden Stearinsäure^{a)} ($\text{C}_{18}\text{H}_{36}\text{O}_2$) und Glycerintristearat^{b)} ($(\text{C}_{17}\text{H}_{35}\text{COO})_3\text{C}_3\text{H}_5$) gewählt, die in sehr reiner Form erhältlich sind und sich leicht verdampfen lassen. Stearinsäure liegt als Testsubstanz für die Elementaranalyse besonders rein und in definierter Stöchiometrie vor. Die Verwendung zweier Substanzen soll die Zuverlässigkeit der Messungen in diesem Punkt bestätigen.

Aus der Literatur über den differentiellen Energieverlust von Protonen in Materie (34,35,36,37) kann dE/dx für die verwendeten Substanzen mit guter Genauigkeit entnommen werden. In Abb. 7 ist der Energieverlust von Protonen für verschiedene Schichtdicken in Abhängigkeit von der Neutronenenergie aufgetragen. Beschränkt man den Energieverlust im Streuer auf 100 keV, so kommen zwischen 500 und 1200 keV danach Streuerdicken bis zu $300 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ in Frage, wobei es möglich ist, durch dickere Streuer bei hohen Energien den Abfall im $\text{H}(n,p)$ -Querschnitt auszugleichen.

Bei der Herstellung der Radiatoren wurde mit großer Sorgfalt gearbeitet, um das Ausgangsmaterial in der vorliegenden, hochreinen Form zu erhalten. Während des Bedampfens war das Vakuum im Rezipienten besser als 5×10^{-6} Torr, wobei eine Kühlfalle mit flüssigem Stickstoff für eine schnelle Kondensation des Verdampfungsgutes sorgte. Sowohl Stearinsäure als auch Glycerintristearat wurden aus Tantalschiffchen verdampft, die bei der Arbeitstemperatur von ungefähr 200°C einen vernachlässigbar kleinen Dampfdruck haben. Durch gleichzeitiges Bedampfen eines Schwingquarzes konnte über dessen - durch die Massenzunahme bedingt - Frequenzänderung (55) der Aufdampfprozeß gesteuert und die gewünschte Schichtdicke auf 5 bis 10 % genau eingehalten werden.

^{a)} E. Merck AG, Darmstadt,

^{b)} Schuchardt, München

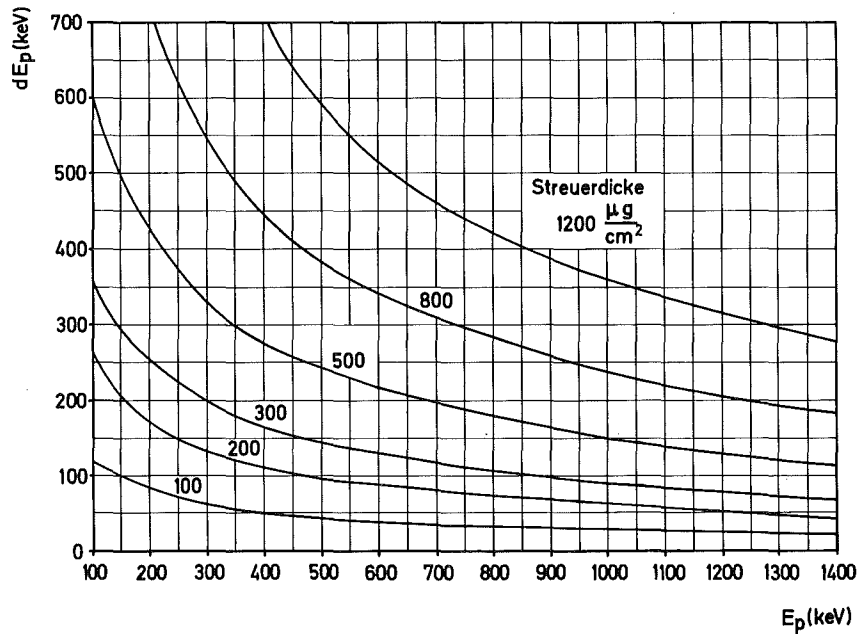


Abb. 7 Energieverlust von Protonen für verschieden dicke Stearinsäureschichten.

Die Erzeugung homogener Aufdampfschichten ist wegen der technischen Bedeutung an vielen Stellen beschrieben worden (56). Danach beträgt die Dickenänderung über dem Radius a der bedampften Probe bei einem Abstand h des Schiffchens

$$\frac{d}{d_0} = \frac{h^4}{(h^2 + a^2)^2} \quad (10)$$

Bei einem Abstand h zwischen Schiffchen und Probenträger von 30 cm, und einem Probenradius von 2 cm bedeutet dies, daß die Dickenänderung über dem Radius der Probe immer kleiner als 0,1 % ist und somit vernachlässigt werden kann. Untersuchungen mit dem Mikroskop zeigten, daß die Aufdampfschichten aus Stearinsäure und Glycerintristearat darüber hinaus sehr glatte und am Rand gut definierte Oberflächen aufweisen.

Die Massenbestimmung der Proben wurde gravimetrisch durchgeführt. Mit einer Mikrofeinwaage wurden die Proben vor und nach dem Bedampfen gewogen. Die reproduzierbare Wägegenauigkeit war besser als 20 μg . Das Gewicht wurde als

Mittelwert aus mindestens zwei Wägungen mit 3 unabhängigen Ablesungen bestimmt. In Tab. 3 sind die Massen der bei der Messung eingesetzten Proben aufgeführt.

Substanz	Probendicke $\mu\text{g}/\text{cm}^2$	Gesamtmenge mg	Unsicherheit %
Stearinsäure	218	5,775	0,5
Stearinsäure	230	3,191	0,9
Stearinsäure	229	3,170	0,9
Stearinsäure	115	1,596	1,8
Tristearin	198	5,242	0,5
Tristearin	152	4,012	0,7
Tristearin	140	3,685	0,8
Tristearin	102	1,888	1,4

Tab. 3 Schichtdicke und Gesamtmenge der Streuproben.

Nach dem Ende der Messung wurde durch eine chemische Mikroanalyse^{c)} der Wasserstoff- und Kohlenstoffgehalt der Proben gemessen. Die Standardabweichung beträgt bei der verwendeten Methode für eine durchschnittliche Einwaage von 4 mg Substanz $\pm 0,18$ % bei Kohlenstoff und $\pm 0,13$ % bei Wasserstoff. Das Ergebnis der Analyse von insgesamt 20 Proben bestätigte die Untersuchungen von ähnlichen Proben im Zentralbüro für Kernmessungen von Euratom in Geel(57). Man findet eine Verringerung des Wasserstoffgehalts, für die es offenbar zwei Gründe gibt. Zum einen spalten sich während des Aufdampfens leichtflüchtige Kohlenwasserstoffe von den großen Molekülen ab, zum anderen verdampfen während des Aufenthalts im Vakuum kleine Mengen von den Proben.

So haben Proben, die nicht bei der Messung verwendet wurden, im Mittel mit 1,9 % einen kleineren Schwund zu verzeichnen als solche Proben, die längere Zeit im Vakuum waren. Diese zeigen einen 3,0 % kleineren Wasserstoffgehalt gegenüber dem stöchiometrischen Anteil. In diesem Verhalten unterscheiden sich Stearinsäure und Glycerintristearat nicht merklich.

^{c)} Alfred Bernhardt, Mikroanalytische Laboratorien, Elbach über Engelskirchen

Bei der Berechnung der Zahl der Wasserstoffatome aus der aufgedampften Menge wird der Schwund entsprechend berücksichtigt. Dabei wird für die Verluste im Vakuum ein linearer Verlauf mit der Zeit angenommen und je nach dem "Alter" der Probe für jeden Lauf mit einem Faktor s korrigiert. Die so entstehende Unsicherheit wird auf ungefähr $0,8\% \text{ }^{\text{H}}$ geschätzt.

4.3 NEUTRONENQUELLE

Die Messung wurde am Karlsruher 3 MV Van-de-Graaff-Beschleuniger durchgeführt. Der Beschleuniger arbeitete gepulst mit einer Pulsbreite von 1 nsec, einer Wiederholfrequenz von 2,5 MHz und einem mittleren Protonenstrom von 8 μA . Als Neutronenquelle wurde die ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ -Reaktion verwendet, deren Schwelle bei einer Protonenenergie von 1.88 MeV liegt. Wegen ihrer Bedeutung für Untersuchungen mit schnellen Neutronen ist diese Reaktion ausführlich beschrieben worden (58).

Für Protonenenergien, die mehr als 120 keV oberhalb der Reaktionsschwelle bei 1.88 MeV liegen, gestattet die ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ -Reaktion die Erzeugung von angenähert monenergetischen Neutronen, wobei die Breite der Energieverteilung ΔE von der Dicke der verwendeten Li-Targets abhängt. Dies ist jedoch nur für den Fall kleiner Raumwinkelbereiche richtig, wie z.B. am Ort des Detektors. Über den ganzen Raumwinkel gesehen ergibt sich wegen der kleinen Masse des Li-Kerns aufgrund der Schwerpunktsbewegung eine deutliche Winkelabhängigkeit der Energieverteilung. Das bedeutet, daß auch Neutronen kleinerer Energie, welche in der Umgebung des Targets gestreut wurden (Typ 2 in Abb. 1) den Detektor erreichen. Da Streuung am Target praktisch erst für Austrittswinkel ab 90° eintritt, beträgt die Energie dieser Neutronen im Energiebereich der Messung stets nur etwas mehr als 50 % von derjenigen der Primärneutronen. Eine zweite Möglichkeit für die Entstehung niederenergetischer Neutronen ist die oberhalb einer Protonenenergie von 2,378 MeV einsetzende ${}^7\text{Li}(p,n\gamma){}^7\text{Be}$ -Reaktion. Ihr Anteil an der Gesamtintensität nimmt von 2 % an der Schwelle bis auf 8 % bei $E_p = 2,9 \text{ MeV}$ zu. Die Energie dieser Neutronen ist im untersuchten Bereich stets kleiner als die der unter 90° emittierten Neutronen.

Das Auftreten solcher zeitkorrelierter Neutronen kleiner Energie wirkt sich sehr nachteilig aus, da sowohl die Energieauflösung der Messung darunter leidet als auch Verfälschungen der Zählraten in den beiden Detektoren verursacht werden. Dieser zweite Umstand kann das Meßergebnis besonders stark beeinflussen, da die Ansprechwahrscheinlichkeit der Detektoren wegen der höheren Reaktionsquerschnitte für Neutronen kleinerer Energie zunimmt und diese niederenergetischen Neutronen dadurch verstärkt zur Reaktionsrate beitragen. Wie in Abschnitt 5 gezeigt wird, ist es jedoch möglich, diesen Untergrund vollständig zu unterdrücken: im Spaltdetektor mit Hilfe der Flugzeitmethode und im Protonenrückstoßdetektor mit Hilfe der Impulshöhenanalyse.

Während der ganzen Messung wurden Li-Targets mit einer gleichbleibenden Dicke von 40 keV verwendet, die auf Träger aus 0,3 mm dickem Tantalblech aufgedampft waren. Tantal eignet sich deshalb gut dafür, weil es von den in Frage kommenden Metallen am wenigsten γ -Untergrund durch inelastische Streuung der Protonen verursacht.

Die Neutronenenergie wurde nach jeder Energieänderung mit der Flugzeitmethode gemessen. Ein Li-Glas-Detektor in einer Entfernung von 3,20 m vom Target lieferte das unter kleinen Winkeln emittierte Neutronenspektrum mit einer Zeitauflösung von 1 nsec/m. Daraus ließ sich die mittlere Neutronenenergie auf 5 keV und die Halbwertsbreite der Verteilung auf 10 % genau ermitteln. Die so bestimmten Neutronenenergien wurden gegen die mit einer Kernresonanzmethode relativ gemessenen Protonenenergien aufgetragen. Mit Hilfe dieser Eichgeraden wurde die Langzeitstabilität der Anordnung geprüft.

4.4 ANORDNUNG VON NEUTRONENQUELLE UND DETEKTOREN

Der Winkel des Flugweges zwischen Neutronenquelle und Detektoren betrug 0° gegen die Richtung des Protonenstrahls, wie in Abb. 1 angedeutet. In Vorwärtsrichtung, d.h. unter kleinen Winkeln gegen den Protonenstrahl, ist die Winkelabhängigkeit der Neutronenenergie am kleinsten. Bei den im Experiment eingehaltenen Geometrien war die dadurch verursachte Energieaufspaltung stets kleiner als 5 keV und damit gegenüber der Targetdicke

von 40 keV vernachlässigbar ist.

Die Anordnung der Detektoren unter 0° zur Richtung des Protonenstrahls hat außerdem den Vorteil, daß das Verhältnis von primärem Neutronenfluß und Raumuntergrund am günstigsten ist, da die Intensitätsverteilung der Neutronen $d^2J/d\Omega dE_n$ unter 0° ihr Maximum besitzt (59).

Der Abstand der Detektoren von der Neutronenquelle sollte aus Intensitätsgründen möglichst klein sein. Wegen der über die Flugzeitmethode angestrebten Trennung der im vorigen Abschnitt erwähnten Neutronen kleinerer Energie vom primären Neutronenfluß muß jedoch bei der gegebenen Zeitauflösung des Spaltdetektors ein Abstand von mindestens 30 cm gewählt werden. Im Verlauf des Experiments war es allerdings wegen der begrenzten Meßzeit nicht durchgehend möglich, diesen Abstand einzuhalten. Da die Dauer der Messung von der Zählrate im Spaltdetektor bestimmt wurde, mußten zwei verschiedene Anordnungen der Detektoren gewählt werden, welche in Abb. 8 skizziert sind.

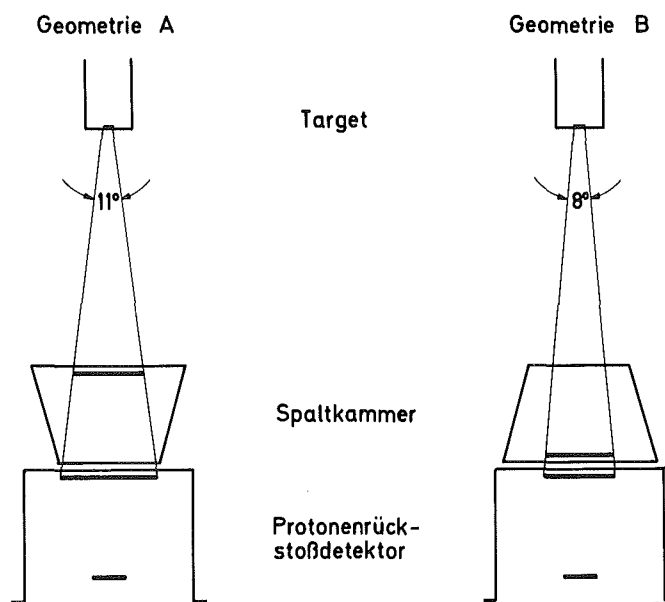


Abb. 8 Anordnung von Target und Detektoren.

Die Position des Protonenrückstoßzählers blieb unverändert, während die Entfernung der Spaltprobe vom Neutronentarget für die Geometrie A auf 22 cm

verkleinert wurde. Auf diese Weise wurde der Raumwinkel zwischen Target und Spaltprobe gegenüber der Anordnung B verdoppelt und die Meßzeit entsprechend halbiert. Dieser Vorteil mußte jedoch mit größeren Korrekturen und damit erheblich größeren Unsicherheiten erkaufte werden. So entstanden für Targetdurchmesser von 4 bzw. 6 mm wegen der endlichen Ausdehnung der Neutronenquelle und dem großen Abstand zwischen Spaltprobe und Radiator Unterschiede im Neutronenfluß durch die Randzonen der Proben. Dies verursachte Abweichungen von 6 % im Meßergebnis. Außerdem war aufgrund der kürzeren Flugzeiten eine zeitliche Trennung der Neutronen kleinerer Energie nicht mehr sauber möglich, was ebenfalls auf verhältnismäßig unsichere Korrekturen von mehr als 5 % führte.

Diese Fehlerquellen wurden durch die Anordnung B nahezu vollständig vermieden. Aus diesem Grund erschien es sinnvoll, nur die Ergebnisse der Geometrie B als Absolutwerte des Spaltquerschnitts anzugeben. Mit Hilfe der an diesen Absolutwerten normierten Ergebnisse der Geometrie A war es möglich, den Energieverlauf des Spaltquerschnitts in detaillierter Weise zu beschreiben.

Wegen der hohen Neutronenenergien und des kleinen Abstands der Detektoren vom Target mußte in beiden Geometrien auf einen Kollimator verzichtet werden.

4.5 ELEKTRONIK

Das in Abb. 9 gezeigte Blockschaltbild veranschaulicht die elektronische Verarbeitung der Szintillationsimpulse im Spaltdetektor.

Die Elektronik enthält einen schnellen Zweig zur Erzeugung der Flugzeitspektren und einen langsamen Zweig für die Registrierung der Impulshöhenspektren. Die schnellen Anodenimpulse der auf gleiche Impulshöhe abgeglichenen Photomultiplier werden auf zwei Trigger gegeben, von denen zur Unterdrückung von Rauschsignalen nur koinzidente Ausgangssignale zum Start des Zeit-zu-Impulshöhen-Konverters verwendet werden. Das Stop-Signal ist durch das Eintreffen des Protonenimpulses am Target gegeben. Die so entstehenden Flugzeitspektren werden in einem 1024-Kanal-Analysator gespeichert. Der langsame

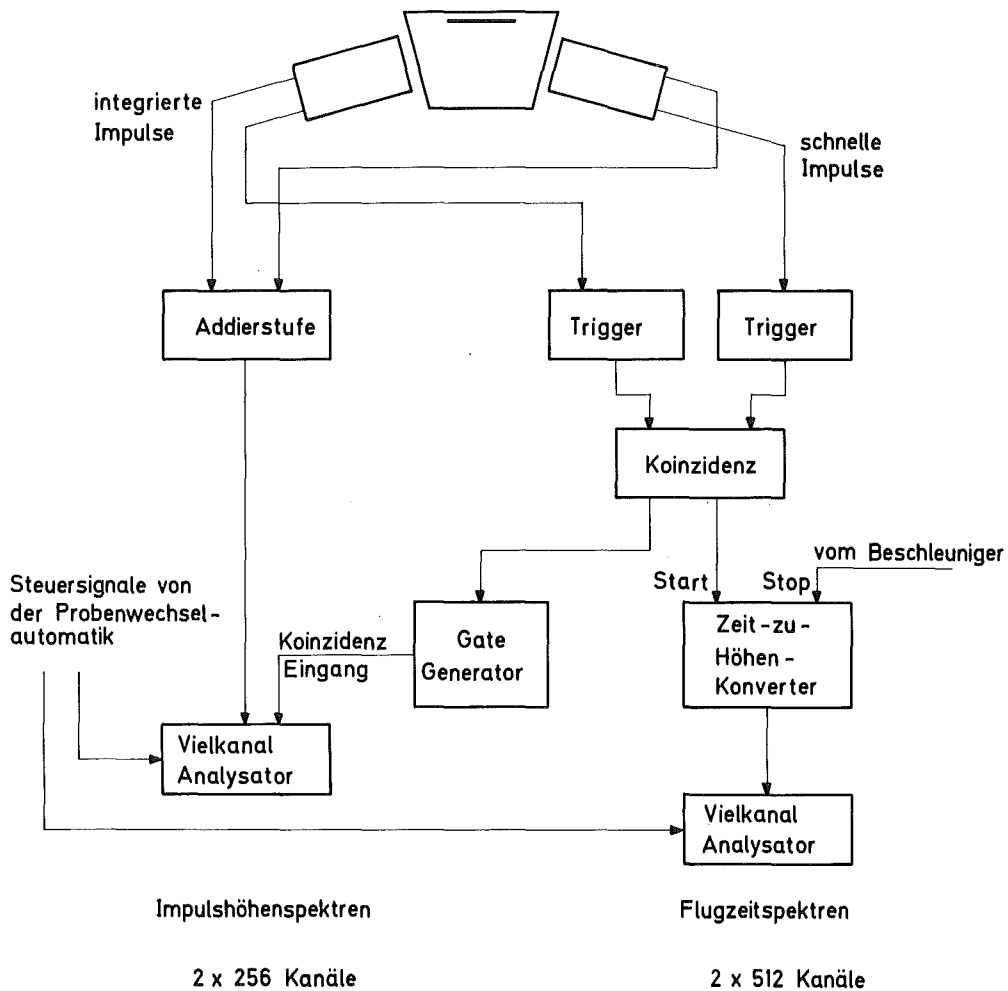


Abb. 9 Blockschaltbild der Elektronik für den Spaltdetektor

Zweig besteht aus einer Addierstufe für die von einer Dynode abgenommenen, integrierten Impulse. Diese werden über eine Koinzidenz mit dem schnellen Zweig in einen 512-Kanal-Analysator eingelesen.

Das Blockschaltbild in Abb. 10 zeigt die dem Protonenrückstoßdetektor nachgeschaltete Elektronik. Nach Vorverstärker und schnellem Verstärker teilt sich die Anordnung ebenfalls in einen Impulshöhenzweig und einen Zeitweig. Im Impulshöhenzweig wird durch den Trigger 1 eine untere Schwelle gesetzt, während die Schwelle im Trigger 2 des Zeitzweigs noch tiefer liegt, um die Zeitinformation des Impulsanstiegs optimal ausnützen zu können.

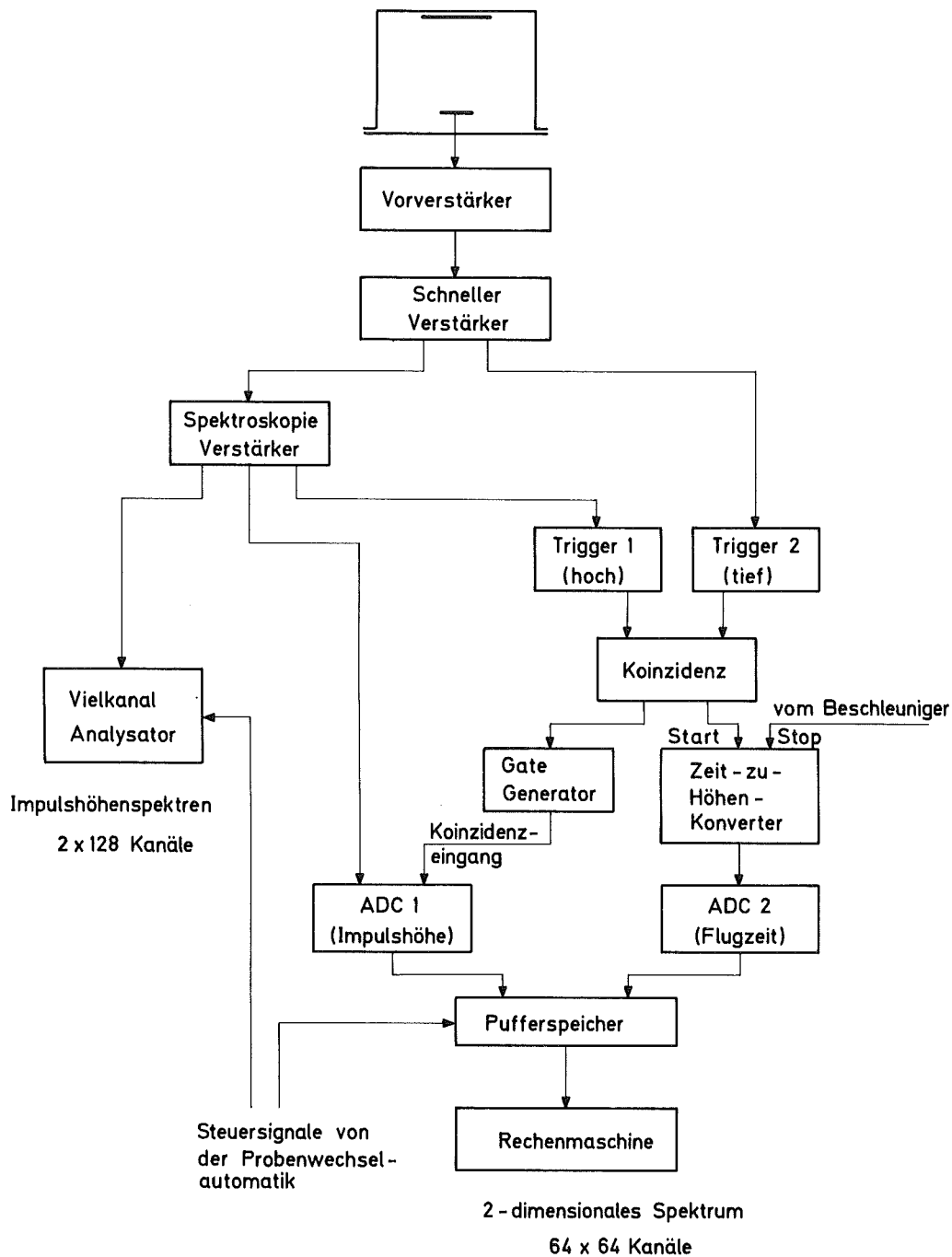


Abb. 10 Blockschaltbild der Elektronik für den Protonenrückstoßdetektor

Zum gleichen Ereignis gehörende Zeit- bzw. Impulshöhensignale werden in Analog-zu-Digital-Konvertern codiert und über einen Pufferspeicher auf eine Rechenmaschine (CAE 510) mit 16 K-Speicher gegeben. Sie bilden dort ein zwei-

dimensionales Spektrum von dem in Abb. 12a ein Höhenschnitt wiedergegeben ist. Da ein solches Spektrum schwer zu übersehen ist, lief während der Messung unabhängig von der Rechenmaschine ein 256-Kanal-Analysator mit, in dem das Impulshöhenspektrum allein aufgezeichnet wurde.

Wie aus den Blockschaltbildern der Abb. 9 und 10 weiter hervorgeht, sind alle Datenerfassungssysteme extern mit einer Probenwechselautomatik verbunden. Diese aktiviert je nach dem Status des Experiments die erste oder zweite Hälfte des jeweiligen Speichers.

5. DURCHFÜHRUNG DER MESSUNG

Während der Dauer des Experiments von über zwei Monaten wurden in Geometrie A insgesamt 24 und in Geometrie B 27 verschiedene Läufe durchgeführt. Diese Vielzahl von Meßreihen wurde zu einem Teil für die Untergrundbestimmung benötigt, hauptsächlich sollten jedoch systematische Fehler durch die Verwendung mehrerer Meßproben sowie verschiedener Geometrien im Protonenrückstoßdetektor ausgeschlossen werden. Die auf diese Weise erzielten konsistenten Ergebnisse bestätigen die Zuverlässigkeit der Messung.

Die in Abschnitt 4.1.2 beschriebene Steuerung der gesamten Anordnung mit Hilfe der Probenwechselautomatik war notwendig, da der Untergrund im Protonenrückstoßdetektor nicht wie beim Spaltdetektor durch eine elektronische Schwelle diskriminiert werden kann, sondern durch die Abdeckung des Halbleiterzählers direkt gemessen werden muß. Um zufällige Unterschiede im Neutronenfluß in den beiden Stellungen der Abdeckung zu vermeiden, wurde die Zykluszeit so klein gewählt, daß jeder Lauf aus ca. 150 Zyklen bestand. Da der Spaltdetektor von der Probenwechselautomatik nicht beeinflusst wird, kann die Gleichheit des Neutronenflusses direkt über die Spaltraten in den beiden Stellungen nachgeprüft werden. Bis auf statistische Abweichungen wurden während des ganzen Experiments keine Unterschiede festgestellt.

Das angesichts der langen Dauer des Experiments wichtige Problem der Schwellenstabilität wurde durch die Eigenschaften der gewählten Detektoren gelöst. Diese Stabilität war im Protonenrückstoßdetektor dadurch gegeben, daß - wie es Abb. 12b zeigt - die Schwelle tiefer gelegt war, als die kleinste mögliche Protonenenergie von ca. 350 keV. Für den Spaltdetektor zeigt das Impulshöhenspektrum der Abb. 6, daß die Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_U nur sehr wenig von der Lage der Schwelle abhängt, solange diese genügend tief liegt. Zur Vermeidung von α -Untergrund liegt die optimale Stellung der Schwelle im Tal zwischen den α -Teilchen und den Spaltfragmenten. Mit Hilfe der fortlaufend gemessenen Impulshöhenspektren konnte sichergestellt werden, daß die Lage der Schwelle und damit ϵ_U mit ausreichender Genauigkeit konstant blieb. Zu dieser Stabilität trug auch bei, daß die Qualität des Zähl-gases durch den ständigen Gasdurchfluß unverändert blieb. Nach jedem Wechsel der Spaltproben, was jeweils mit einem Öffnen des Detektors verbunden war, stellte sich bei kurzzeitig verstärktem Spülen bereits nach wenigen Minuten wieder der stabile Zustand ein.

Ein für den Spaltdetektor typisches Flugzeitspektrum, das in Geometrie B bei einer Neutronenenergie von 911 keV aufgenommen wurde, ist in Abb. 11 in logarithmischem Maßstab dargestellt.

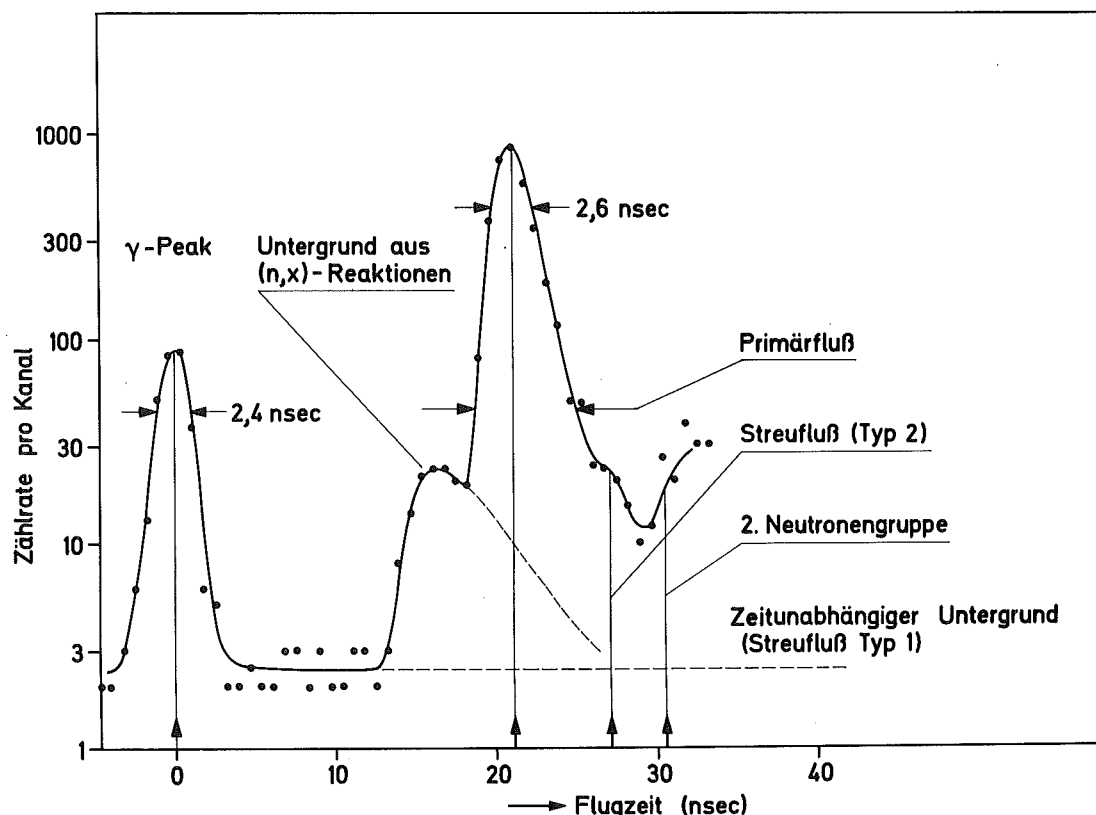


Abb. 11 Flugzeitspektrum in Geometrie B für eine Neutronenenergie von 911 ± 23 keV

In der zeitlichen Reihenfolge erscheint in diesem Spektrum zuerst der γ -Peak, welcher von der inelastischen Streuung der Protonen bei ihrem Auftreffen auf das Target herrührt. Zwischen dem γ -Peak und dem Eintreffen der ersten Neutronen liegen nur Ereignisse, die von Streuneutronen aus dem Raum (Typ 1 in Abb. 1) ausgelöst wurden und die den zeitunabhängigen Untergrund bilden. Als nächstes wird der Untergrund aus (n,x)-Reaktionen sichtbar, der durch direkte Prozesse der Neutronen im Detektormaterial bzw. in den Multipliern selbst verursacht wird. Dieser Untergrund wurde im Verlauf des Experiments im ganzen Energiebereich direkt gemessen. Er beträgt im Beispiel der Abb.11 2,3 %

der überlagerten, vom Primärfluß ausgelösten Ereignisse. Die zeitliche Begrenzung dieser Ereignisse ist durch Pfeile markiert. Daran anschließend erscheinen zuerst Spaltereignisse, die von Streuneutronen aus dem Target (Typ 2) und dann solche, die von Neutronen aus der ${}^7\text{Li}(p,n\gamma)$ -Reaktion verursacht werden. Die zeitliche Trennung der letzten beiden Gruppen vom Hauptpeak ist ausreichend für eine Diskriminierung dieser Untergrundereignisse. Diese Aussage gilt im ganzen untersuchten Energiebereich. Die Neutronenenergie des ausgewählten Beispiels liegt nahezu in der Mitte des Bereichs und da sich die Flugzeiten der Neutronen nur mit $E_n^{-1/2}$ ändern, sind die Unterschiede im Flugzeitspektrum gegenüber den übrigen Energien relativ gering.

Die Zeitauflösung ist wegen des Störpegels der langen Verbindungskabel zwischen Detektor und Elektronik mit 2,2 nsec etwas schlechter als der in Abschnitt 4.1.1 angegebene Wert. Unter Berücksichtigung der Pulsbreite von 1 nsec ergibt sich im γ -Peak eine Zeitauflösung von 2,4 nsec und im Hauptpeak eine solche von 2,6 nsec, da in diesem Fall noch die Laufzeitdifferenzen der Neutronen hinzukommen.

Eine Korrektur, die nicht aus dem Flugzeitspektrum bestimmt werden kann, wird wegen der am Detektor selbst gestreuten Neutronen (Typ 3) notwendig. Da in diesem Fall die Laufzeitunterschiede für eine zeitliche Trennung nicht ausreichen, wurde diese Korrektur hauptsächlich durch Rechnung ermittelt. Ein Versuch, sie experimentell zu bestimmen, bestand darin, die Detektormasse durch Hinzufügen eines entsprechenden Satzes von Bauteilen zu verdoppeln. Die Differenz im Meßergebnis gibt dann den Einfluß dieser Streukorrektur wieder. Insgesamt wurden 6 Läufe mit verdoppelten Massen bei verschiedenen Energien durchgeführt.

Das Problem des Untergrunds ist im Protonenrückstoßdetektor leichter zu erfassen, da man wegen der Beziehung (8) zwischen Neutronen- und Protonenenergie auch das Impulshöhenspektrum zur Untergrunddiskriminierung verwenden kann. Die Aufsammlung der Information über Flugzeit und Impulshöhe in einem zweidimensionalen Spektrum erlaubt dies in besonders vorteilhafter Weise, da man durch geeignete Schnitte in x- und y-Richtung den für die jeweilige Neutronenenergie richtigen Teil des Spektrums abgrenzen und getrennt auswerten kann.

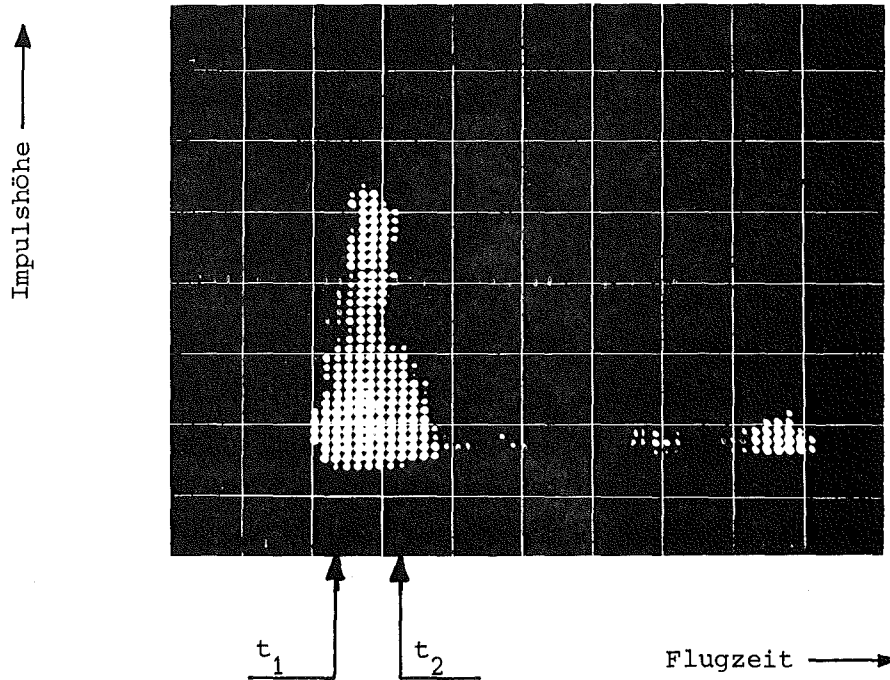


Abb. 12a Hörenschnitt durch das zweidimensionale Spektrum des Protonenrückstoßzählers ($E_n = 909 \pm 22$ keV).

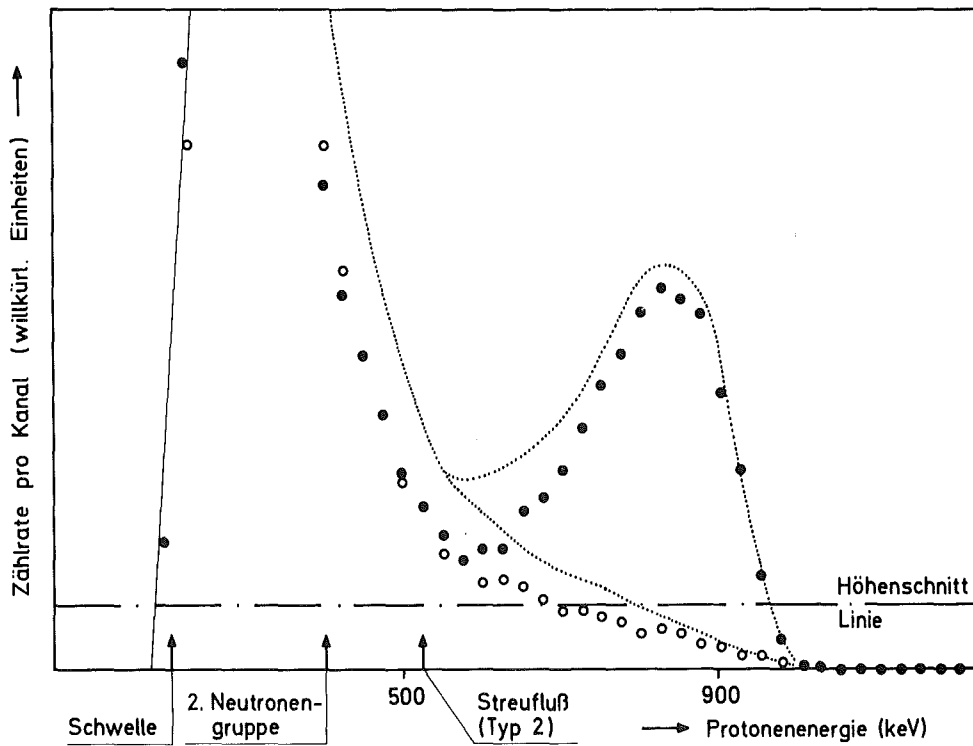


Abb. 12b Impulshöhenspektrum der Rückstoßprotonen aus einem y -Schnitt zwischen den Flugzeiten t_1 und t_2

In Abb. 12a ist der Höhenschnitt durch ein zweidimensionales Spektrum gezeigt, das bei einer Neutronenenergie von 909 ± 22 keV aufgenommen wurde. Darin erscheinen die Rückstoßprotonen als schmales Band, das bei kleinen Impulshöhen in eine breitere Verteilung übergeht. Diese besteht aus einer Überlagerung des γ -Peaks mit dem von den Neutronen im Halbleiterzähler verursachten Untergrund.

In dem durch die Flugzeiten t_1 und t_2 markierten Bereich, der alle Rückstoßprotonen enthält, wurden die Impulshöhenspektren zusammengefaßt. Das Ergebnis ist in Abb. 12b dargestellt. Es zeigt deutlich die verbesserte Untergrunddiskriminierung gegenüber dem punktiert gezeichneten Impulshöhenspektrum, das durch Zusammenfassung aller Flugzeiten gebildet wurde. Dieser Vorteil ist bei kleineren Neutronenenergien noch ausgeprägter, da wegen der längeren Flugzeiten der γ -Peak vom übrigen Untergrund zeitlich besser getrennt werden kann. Die Höhenschnittlinie von Abb. 12a ist strichpunktiert eingezeichnet.

In Abb. 12b sind außerdem die größten Impulshöhen für die Untergrundneutronen kleinerer Energie durch Pfeile angedeutet. Sie können im Impulshöhenspektrum gut vom Primärfluß getrennt werden. Die verbleibende Korrektur für Streuneutronen des Typs (3) wird wie beim Spaltdetektor durch Rechnung und ergänzend aus Messungen mit verdoppelter Detektormasse bestimmt. Der im Halbleiterzähler entstehende Untergrund, der im gezeigten Beispiel unterhalb von 500 keV ansteigt, verlagert sich für kleinere Neutronenenergien zu niedrigeren Impulshöhen. Trotzdem ist der Meßbereich durch diesen Untergrund begrenzt, da für Messungen unterhalb 500 keV die statistische Unsicherheit der Untergrundsubtraktion zu groß wird.

6. AUSWERTUNG

6.1 GANG DER AUSWERTUNG

Zur Berechnung des Spaltquerschnitts σ_f müssen die Größen in Gleichung (7) bestimmt werden. Davon sind N_U und $s_H \cdot N_H$, die Anzahl der Uran- bzw. Wasserstoffatome auf den Proben, bereits aus der Massenanalyse bekannt. Der Wasserstoffstreuquerschnitt wurde nach der von Gammel (60) angegebenen Interpolationsformel berechnet. Aufgrund der Werte anderer Autoren (61,62,63,64) im Bereich von 500 bis 1200 keV wurde diese Kurve mit einem Gewichtungsfaktor von 0.9920 normiert. Die Unsicherheit im Streuquerschnitt dürfte somit kleiner als 0,5 % sein. Die Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_H des Protonenrückstoßdetektors ergibt sich aus dessen geometrischen Abmessungen durch Rechnung und die Zählraten Z_U bzw. Z_H werden aus den Meßdaten ermittelt. Die Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_U des Spaltdetektors wird durch die kombinierte Analyse von gemessenen und gerechneten Impulshöhenverteilungen festgelegt.

Diese Prozedur wurde für jeden Lauf durchgeführt. Man erhält auf diese Weise Aufschluß über die Streuung des Ergebnisses in Abhängigkeit von den verwendeten Proben, bzw. der jeweiligen Blende im Protonenrückstoßzähler. Die so ermittelten Werte werden anschließend nach Neutronenenergien getrennt zusammengefaßt, wie es in Tab. 6 für die Neutronenenergie $E_n = 758 \pm 23$ keV dargestellt ist.

6.2 ERMITTLUNG DER BESTIMMUNGSGRÖSSEN FÜR σ_{fU}

6.2.1 ZÄHLRATEN Z_U UND Z_H

Die Ereigniszählrate Z_U im Spaltdetektor während eines Laufs konnte aus dem Flugzeitspektrum in Abb. 11 bestimmt werden. Dazu wurde das Flugzeitspektrum für das Zeitintervall integriert, in dem Spalttereignisse durch den Primärfluß erwartet werden. Von dieser Zählrate wird der Untergrund subtrahiert, der sich unmittelbar aus dem Spektrum ergibt. Soweit er im Flugzeitspektrum zeitlich getrennt werden kann, handelt es sich entsprechend

Abb.1 um den Untergrund durch Streuneutronen vom Typ (1) und (2), sowie den gesondert bestimmten Untergrund aus (n,x)-Reaktionen. Bei den höchsten Energien kommt dazu noch ein kleiner Anteil aus der zweiten Neutronengruppe.

Die Ermittlung der Zählrate im Protonenrückstoßdetektor beschränkt sich auf die Subtraktion der Impulshöhenspektren mit abgedecktem und offenem Halbleiterzähler. Die untere Grenze im Spektrum der Rückstoßprotonen ergibt sich über das Streugesetz nach Gleichung (8) aus der inneren Geometrie des Detektors. Der Beitrag des Untergrunds von Neutronen kleinerer Energie wird dadurch über die Impulshöhe diskriminiert.

Diese erste Auswertung der gemessenen Spektren ergibt Zählraten, die noch auf den Anteil korrigiert werden müssen, der durch Streuneutronen vom Typ (3) entsteht. Dieser Anteil hängt von der Masse des Detektors und von den Streuquerschnitten der verschiedenen Materialien ab und soll künftig mit Hilfe von Faktoren K_U und K_H berücksichtigt werden (siehe Abschnitt 6.3.1).

Für die Zählraten Z_U und Z_H wird jeweils ein Fehler angegeben, der die Unsicherheit der Untergrundsubtraktion und der dazu benötigten Zeitbereichsabgrenzungen enthält. Da es sich stets um statistische bzw. voneinander unabhängige Fehler handelt, wird der Fehler der Zählraten durch quadratische Addition der Einzelfehler gebildet.

6.2.2 ANSPRECHWAHRSCHEINLICHKEITEN ϵ_U UND ϵ_H

Die Frage nach der Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_U als dem Verhältnis der nachgewiesenen zu den insgesamt stattgefundenen Spalttereignissen kann nicht allein vom Experiment her beantwortet werden. Daß Spalttereignisse nicht nachgewiesen werden, kommt dann vor, wenn die Anfangsrichtung des betreffenden Fragments mit der Probenoberfläche einen sehr kleinen Winkel einschließt. Wegen der endlichen Probendicke kann das Fragment dann entweder ganz in der Probe steckenbleiben oder mit so kleiner Energie austreten, daß es unter der Nachweisschwelle des Detektors bleibt.

Zur Bestimmung dieser Nachweisschwelle in Einheiten der Fragmentenergie ist es möglich, im unteren, linearen Teil des Impulshöhenspektrums der Abb. 6 auf zwei verschiedene Arten eine Zuordnung von Energie und Impulshöhe zu treffen. Erstens kann eine direkte Zuordnung der bekannten Energieverteilung der Fragmente aus der Spontanspaltung von ^{252}Cf zu entsprechenden Testmessungen durchgeführt werden, da für das sehr dünne Cf-Präparat keine Ansoptionskorrekturen notwendig sind. Zweitens kann diese Zuordnung mit Hilfe der in Abb. 4 gestrichelten, durch Rechnung angepaßten Energieverteilung erfolgen. Daraus ergibt sich übereinstimmend für die Lage der Schwelle ein Wert von 15 ± 5 MeV, wobei die angegebene Unsicherheit eine obere Grenze darstellt.

Die Abschätzung des Teils der Spaltfragmente, die unterhalb dieser Schwelle bleiben, kann durch Rechnung vorgenommen werden. Außer der Schichtdicke braucht man dazu die ursprüngliche Energieverteilung der Fragmente und ihre Energie-Reichweite-Beziehung im Probenmaterial. Solche Rechnungen sind von verschiedenen Autoren (65,66,67) für U_3O_8 durchgeführt worden. Wegen der nur näherungsweise bekannten Energie-Reichweite-Beziehungen sind solche Rechnungen jedoch immer auf die Anpassung an die gemessene Verteilung angewiesen. Aus diesem Grund wurde das in Kapitel 4.1.1 schon kurz beschriebene Rechenprogramm entwickelt. Das Kriterium für die geeignete Energie-Reichweite-Beziehung war die richtige Wiedergabe des Impulshöhenspektrums im linearen Teil oberhalb der Schwelle. Mit dieser Anpassung wurde für die verschiedenen Probendicken die Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_U des Detektors berechnet. Die Genauigkeit dieses Verfahrens kann mit Hilfe des schraffierten Anteils in Abb. 6 abgeschätzt werden. Extrapoliert man die gemessene Verteilung mit dem gerechneten Verlauf unterhalb der Schwelle, so findet man, daß die Fragmente, die zwar aus der Probe austreten, jedoch unterhalb der Schwelle bleiben, 1,8 % aller Ereignisse ausmachen. Das Rechenprogramm ergibt, daß 4,10 % aller entstandenen Fragmente aufgrund von Absorptionsverlusten in der Probe nicht nachgewiesen werden. Davon bleiben 2,13 % vollständig in der Probe stecken, während folglich 1,97 % die Probe mit Energien zwischen 0 und 15 MeV verlassen. Dies ist in guter Übereinstimmung mit dem extrapolierten Anteil der experimentell bestimmten Verteilung.

Für homogene Proben haben Rossi und Staub (68) die Berechnung von Absorptionsverlusten für 2 π -Geometrie in geschlossener Form angegeben. Durch

Integration über die Schichtdicke und die Winkel der Fragmentrichtungen gegen die Normale von 0° bis zu dem Winkel θ_{\max} , unter dem Fragmente mit 15 MeV austreten, erhält man für die Ansprechwahrscheinlichkeit

$$\epsilon_U = 1 - \frac{t}{2 \langle R \rangle} \quad (11)$$

Es bedeuten t die Probendicke und R den Weg eines Fragments bis zu seiner Abbremsung auf 15 MeV. In Tabelle 4 sind die Werte für ϵ_U zusammen mit den geschätzten Fehlern aufgeführt. Die nach Gleichung (11) bestimmten Werte sind in Klammern eingesetzt.

Ansprechwahrscheinlichkeit des Spaltdetektors		
Probendicke $\mu\text{g}/\text{cm}^2$	ϵ_U (in Klammern Werte nach Gleichung (11))	Unsicherheit %
139	0.959 (0.957)	1,0
100	0.969 (0.968)	0,8
95	0.969 (0.969)	0,8
74	0.978 (0.976)	0,6
Ansprechwahrscheinlichkeit des Protonenrückstoßdetektors		
Blendendurchmesser mm	ϵ_H	Unsicherheit %
16,75	$1.999 \cdot 10^{-2}$	0,8
17,92	$2.277 \cdot 10^{-2}$	0,8
19,00	$2.537 \cdot 10^{-2}$	0,8

Tabelle 4 Ansprechwahrscheinlichkeiten ϵ_U und ϵ_H der Detektoren für Geometrie B

Die Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_H des Protonenrückstoßdetektors wurde mit dem in Kapitel 4.1.2 beschriebenen Monte-Carlo-Programm gerechnet. In Tab. 4

sind die Werte von ϵ_H für die in Geometrie B verwendeten Blenden des Halbleiterzählers angegeben. Die Fehler in ϵ_H sind durch Variation der Eingabedaten (Radiator- und Blendendurchmesser sowie Abstand Radiator - Detektor) in den Grenzen ihrer Meßfehler bestimmt worden. Die statistische Unsicherheit der Rechnung beträgt 0,4 %.

6.3 KORREKTUREN

6.3.1 KORREKTUR FÜR STREUNEUTRONEN

In Kapitel 6.2.1 wurde schon darauf hingewiesen, daß es notwendig ist, die Zählraten Z_U und Z_H um den Anteil der Streuneutronen am Primärfluß, der nicht zeitlich getrennt werden kann, zu korrigieren. Dabei ist man hauptsächlich auf Rechnungen angewiesen. Die experimentelle Bestimmung durch Verdopplung der Detektorbauteile ist sehr ungenau, da auf diese Weise die relativ kleine Korrektur als Differenz zweier großer Zahlen erscheint, deren Unsicherheit in der gleichen Größenordnung liegt.

Als Entstehungsort für Streuneutronen des betrachteten Typs (3) kommt die nähere Umgebung der Proben, d.h. die Detektoren selbst in Frage. Sowohl der Einfluß der Detektorgeometrie als auch die Winkelverteilung der Streuneutronen läßt die Berechnung der Streukorrektur in geschlossener Form nicht zu. Lediglich der Beitrag des Trägerblechs kann unter der Annahme isotroper Streuung durch Integration bestimmt werden. Diese Möglichkeit wurde jedoch nur zum Test des Rechenprogramms benützt, das zur Lösung dieses Problems verwendet wurde. Zur Berücksichtigung der Geometrie der Detektoren wurden diese durch Kreisscheiben senkrecht zur Neutronenrichtung und konzentrische Zylinder parallel dazu angenähert. Die vom Target isotrop ausgehenden Neutronen werden an den Teilen des idealisierten Detektors gestreut, wobei man Streuort und Streuwinkel mit der Monte-Carlo-Methode auswürfelt. Aus dem Anteil der Neutronen, die nach der Streuung die Probe treffen, wird die Streukorrektur in Energieschritten von 50 keV berechnet. In diese Rechnung geht für das betreffende Material (Quarz, Bronze, rostfreier Stahl) der makroskopische Streuquerschnitt $N\sigma_s$ ein sowie das Verhältnis der Raumwinkel, unter welcher der Streuer bzw. die Probe vom Target aus erscheinen. Ein weiterer Faktor berücksichtigt den größeren Weg der Streuneutronen in der Probe.

Bei höheren Neutronenenergien, wie es hier der Fall ist, treten Streuwellen höherer Ordnung mit anisotroper Winkelverteilung auf. Diese Winkelverteilung läßt sich durch eine Entwicklung in Legendre-Polynome (69) darstellen. Für den differentiellen Streuquerschnitt kann man dann schreiben

$$\frac{d\sigma_s}{d\Omega} = \frac{\sigma_s}{4\pi} \sum_{l=0}^{\infty} \omega_l P_l(\cos \theta) \quad (12)$$

Hierbei bedeutet l die Quantenzahl des Bahndrehimpulses zwischen Kern und einfallendem Neutron, θ den Streuwinkel, P_l das Legendre-Polynom und ω_l den Legendre-Koeffizienten.

Für die Berechnung des Vektors der Neutronenrichtung nach der Streuung wurde die Legendre-Entwicklung mit $l = 2$ abgebrochen. Wie man Ref. (70) entnehmen kann, ist dies ausreichend für eine gute Anpassung an experimentell gemessene Verteilungen. Der Rechengang zur Bestimmung der neuen Vektorkomponenten ist einem Programm von R.-E. Bandl (71) entnommen, die Legendre-Koeffizienten ω_1 und ω_2 stammen hauptsächlich aus Arbeiten von Lane und Langsdorf (72,73) sowie von Garber et.al. (70).

Das Ergebnis der Rechnung zeigt erwartungsgemäß, daß wegen des längeren Weges der gestreuten Neutronen in der Probe die Streukorrektur für den Spaltdetektor am größten ist. Beim Protonenrückstoßdetektor wirkt sich dagegen die Bedingung aus, daß ein Rückstoßprozeß nur dann nachgewiesen wird, wenn der Streuwinkel θ und damit die Energie des Protons innerhalb des zulässigen Bereichs liegt. Auf diese Weise können die meisten Streuorte aus Geometriegründen ausgeschieden werden. Einen Beitrag zur Streukorrektur liefern nur die entfernteren, achsennahen Teile des Spaltdetektors. Im Korrekturfaktor k_H ist außerdem die Schwächung des Neutronenflusses in den Probenträgern und Neutronenfenstern der Detektoren enthalten.

In Abb. 13 sind die Korrekturen k_U und k_H dargestellt. Außerdem sind die experimentell bestimmten Korrekturen aus Läufen mit verdoppelten Detektormassen eingezeichnet; sie stimmen innerhalb der Fehlergrenzen mit der Rechnung überein. Für die Struktur im Energieverlauf von k_U und k_H sind entspre-

chende Strukturen im Streuquerschnitt bzw. in den Legendre-Koeffizienten der Winkelverteilung der Detektormaterialien verantwortlich.

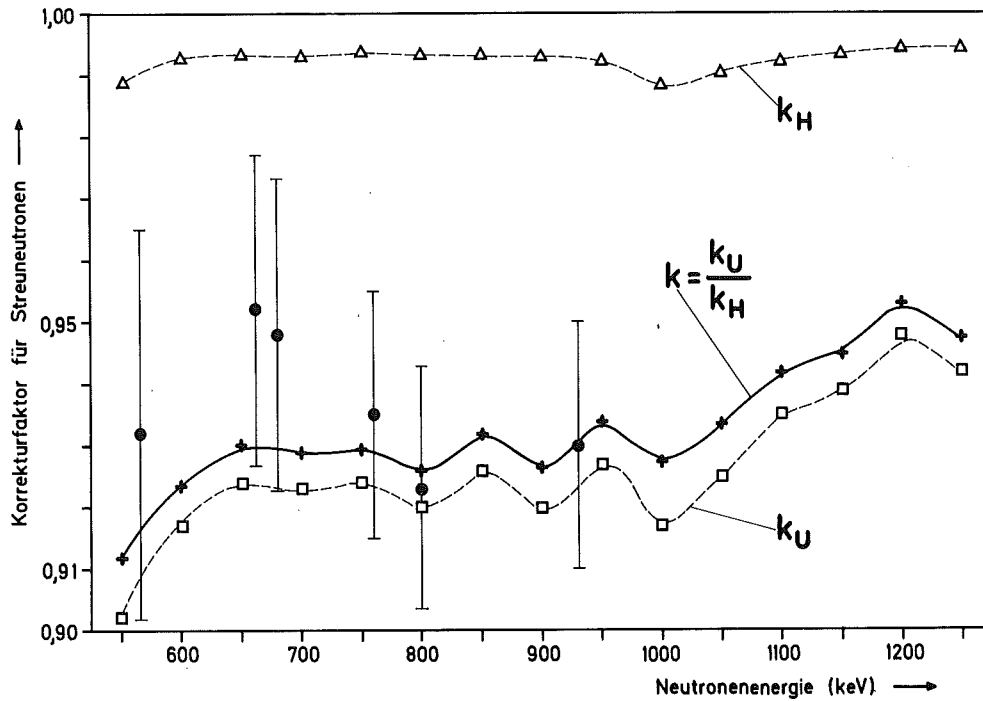


Abb. 13 Korrekturfaktoren k_U und k_H für die Zählraten im Spalt- bzw. Protonenrückstoßdetektor. Zum Vergleich mit der Gesamtkorrektur k sind experimentelle Werte eingetragen.

Der Fehler der gesamten Streukorrektur ergibt sich aus der nur angenäherten Detektorgeometrie und den Unsicherheiten der verwendeten Streuquerschnitte und Legendre-Koeffizienten. Man kann abschätzen, daß der Anteil der von Streuneutronen ausgelösten Ereignisse auf 20 % genau bestimmt wurde. Das bedeutet, daß der Fehler der Streukorrektur zu einem relativen Fehler im Endergebnis von 1,0 bis 1,6 % führen kann.

6.3.2 SONSTIGE KORREKTUREN

In diesem Kapitel sollen noch Effekte erwähnt werden, die zu vernachlässigbaren Korrekturen führen.

Dazu gehören Abweichungen vom angenommenen Energieverlauf des $H(n,p)$ -Querschnitts. Hrehuss und Czibok (74) fanden sowohl eine beträchtliche Anisotropie in der Winkelverteilung dieser Reaktion im Schwerpunktsystem als auch Fluktuationen im Streuquerschnitt selbst. Paulsen und Liskien (75) wiesen jedoch mit wesentlich verbesserter Genauigkeit nach, daß es keine Anhaltspunkte für eine Anisotropie gibt, während Cierjacks et.al. (76) mit einer sehr genauen Messung Fluktuationen im Streuquerschnitt ausschließen konnten. Beide Arbeiten bestätigen die semiempirische Beziehung von Gammel (60), die in der vorliegenden Arbeit zur Interpolation der in (61-64) angegebenen Meßdaten verwendet wurde.

An dieser Stelle muß auch der Einfluß der Schwerpunktsbewegung und der Winkelanisotropie der Spaltfragmente auf die Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_U erwähnt werden. Der Impuls des einfallenden Neutrons bewirkt, daß die Spaltfragmente bevorzugt in Vorwärtsrichtung und dadurch nicht genau in entgegengesetzter Richtung emittiert werden. Das bedeutet für Geometrie B eine Verkleinerung der Ansprechwahrscheinlichkeit. Weiterhin haben Nesterov et.al. (77) nachgewiesen, daß die Winkelverteilung der Spaltfragmente eine leichte Anisotropie aufweist. Sie finden im betrachteten Energiebereich für ^{235}U einen größten Wert von 1,14 für das Verhältnis der unter 0° bzw. 90° zur Einfallsrichtung des Neutrons entstehenden Fragmente (siehe Abb. 17).

Aus der Untersuchung dieser Effekte durch White (16) ergibt sich jedoch, daß sich ihr Einfluß auf ϵ_U teilweise aufhebt und für die in dieser Arbeit vorkommenden Probendicken und Neutronenenergien vernachlässigt werden kann.

6.4 FEHLERABSCHÄTZUNG

Wegen der Korrekturfaktoren s_H und k zur Berücksichtigung der Stöchiometrie der Radiatorschichten und des Streuneutronenanteils muß Gleichung (7) zur Bestimmung des Spaltquerschnitts modifiziert werden.

$$\sigma_{fU} = \sigma_H \cdot k \cdot \frac{Z_U}{Z_H} \cdot \frac{s_H \cdot N_H}{N_U} \frac{\epsilon_U}{\epsilon_H} \quad (13)$$

Mit dieser Beziehung wird σ_{fU} für jeden Lauf bestimmt. Die Einzelwerte werden mit ihrem statistischen Fehler gewichtet und für jede Energie zum Endergebnis zusammengefaßt. Für den statistischen Fehler gilt dabei

$$\left(\frac{\Delta\sigma_{fU}}{\sigma_{fU}}\right)_{stat.}^{-2} = \sum_i \left(\frac{\sigma_{fU}}{\sigma_{fU\ i}}\right)_{stat.}^{-2} \quad (14)$$

In Tab. 5 ist als Beispiel die Auswertung der Läufe bei 760 keV zusammengestellt.

N_H $\cdot 10^{20}$	N_U $\cdot 10^{18}$	ϵ_H $\cdot 10^{-2}$	σ_{fU} (barn)	Stat. Fehler (%)	Neutronen- energie (keV)
1,217	4,467	2,537	1,131	3,08	750±25
1,217	4,467	2,537	1,237	4,38	760±21
2,416	4,467	2,277	1,151	1,85	758±20
1,403	4,467	2,777	1,164	2,73	760±25
1,403	3,250	2,777	1,134	3,04	760±25
Endergebnis für σ_{fU}			1,164	1,2	758±23

Tab. 5 Berechnung des Spaltquerschnitts σ_{fU} bei 760 keV aus verschiedenen Läufen

In den Gesamtfehler des Endergebnisses für σ_{fU} in Geometrie B gehen alle Einzelfehler der Größen in Gleichung (13) ein. Diese Einzelfehler wurden bereits diskutiert und sind in Tab. 6 noch einmal zusammengestellt.

Mit der Annahme, daß alle Einzelfehler voneinander unabhängig sind, wird der Gesamtfehler nach dem statistischen Fehlerfortpflanzungsgesetz durch quadratische Addition berechnet.

$$\left(\frac{\Delta\sigma_{fU}}{\sigma_{fU}}\right)^2 = \sum_i \left(\frac{\Delta B_i}{B_i}\right)^2 \quad (15)$$

B_i steht für die Bestimmungsgrößen in Gleichung (13). Auf diese Weise ergibt sich für das Beispiel bei 760 keV ein Gesamtfehler von $\pm 2,6$ %. Für die übrigen

in Geometrie B bestimmten Absolutwerte von σ_{fU} liegt der Gesamtfehler zwischen 2,6 und 3,4 %.

Fehlerquelle	Bezeichnung	rel. Fehler (%)
Wasserstoffstreuquerschnitt	σ_H	0,5
Korrektur für Streuneutronen	k	1,0 - 1,8
Zählratenverhältnis mit Untergrundkorrektur	Z_U/Z_H	0,8 - 2,0
Korrektur für die Stöchiometrie der Radiatorschichten	s_H	0,8
Zahl der Wasserstoffatome	N_H	0,5 - 1,8
Zahl der Uranatome	N_U	0,5
Ansprechwahrscheinlichkeit der Detektoren	ϵ_H	0,6 - 1,0
	ϵ_U	0,8
Gesamtfehler		2,6 - 3,4

Tab. 6 Aufstellung der Einzelfehler bei der Bestimmung des Spaltquerschnitts

Für die Berechnung der in Geometrie A gemessenen Relativwerte kann Gleichung (13) vereinfacht werden:

$$\sigma_{fU} = F(E) \frac{z_U}{z_H} \quad (16)$$

Durch die geänderte Schreibweise für die Zählraten z_U und z_H soll angedeutet werden, daß es sich hierbei aus den im Abschnitt 4.4 angeführten Gründen nicht mehr um absolute Zählraten handelt. Der Eichfaktor F wird durch optimale Anpassung der Relativwerte an die absolut gemessenen Spaltquerschnitte bestimmt. Die Energieabhängigkeit von F entsteht durch den darin enthaltenen Wasserstoffstreuquerschnitt σ_H und den Streukorrekturfaktor k und muß entsprechend berücksichtigt werden.

Die Unsicherheit des Eichfaktors F entspricht dem mittleren Fehler der zur Normierung verwendeten Absolutwerte und kann zu ungefähr 3 % angenommen werden. Sieht man jedoch vom Absolutwert ab, so kann der Energieverlauf von

σ_{FU} mit wesentlich besserer Genauigkeit wiedergegeben werden, da dann in den Gesamtfehler lediglich die statistischen Unsicherheiten eingehen. Diesem Umstand wurde bei der Fehlerangabe für die normierten Relativwerte Rechnung getragen.

7. ERGEBNIS UND DISKUSSION

7.1 ERGEBNIS UND VERGLEICH MIT FRÜHEREN ARBEITEN

Als Ergebnis der Messung konnten auf die beschriebene Weise 7 Absolut- und 12 Relativwerte des Spaltquerschnitts von ^{235}U zwischen 500 und 1200 keV Neutronenenergie bestimmt werden. Der mittlere Fehler liegt bei den Absolutwerten zwischen 2,6 und 3,4 %, bei den Relativwerten zwischen 0,9 und 2,1 %. Einen Überblick über das Ergebnis zeigt Abb. 14; die numerischen Werte sind in Tab. 7 zusammengestellt.

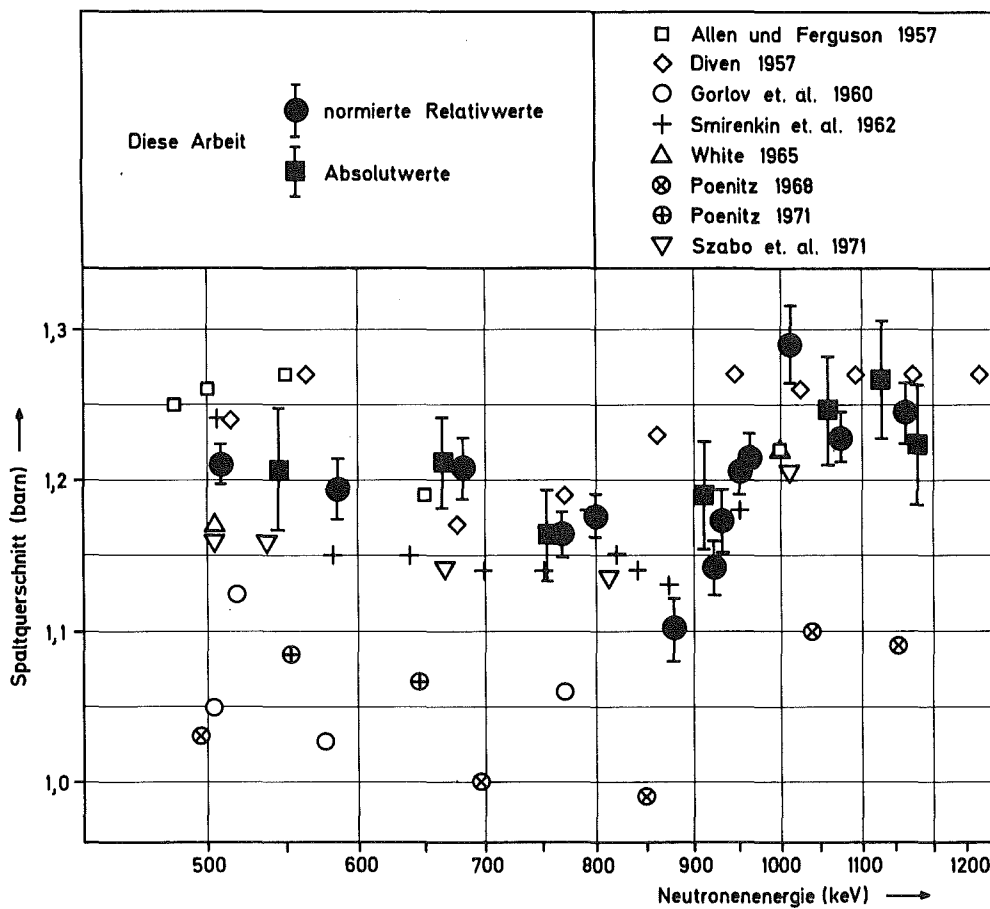


Abb. 14 Gemessene Werte des Spaltquerschnitts von ^{235}U und Vergleich mit anderen Autoren

RELATIVWERTE		
E_n (keV)	σ_{fU} (barn)	Fehler (%)
513 ± 32	1,210	0,9
580 ± 20	1,193	1,8
678 ± 21	1,208	1,2
767 ± 20	1,165	0,9
795 ± 20	1,178	1,2
872 ± 20	1,012	2,1
920 ± 22	1,141	1,5
930 ± 20	1,172	1,9
945 ± 24	1,206	1,1
966 ± 21	1,213	1,2
1013 ± 20	1,293	1,9
1060 ± 22	1,227	1,2
ABSOLUTWERTE		
E_n (keV)	σ_{fU} (barn)	Fehler (%)
546 ± 22	1,207	3,4
662 ± 23	1,215	2,6
758 ± 23	1,164	2,6
908 ± 22	1,193	2,9
1057 ± 26	1,248	3,0
1125 ± 25	1,256	3,4
1175 ± 25	1,221	3,4

Tab. 7 Gemessene Werte des Spaltquerschnitts von ^{235}U

In Abb. 14 sind außer den Ergebnissen dieser Arbeit noch alle nach 1956 veröffentlichten Werte des Spaltquerschnitts von ^{235}U eingezeichnet. Diese früheren Arbeiten können aufgrund der Ergebnisse in 2 Gruppen eingeteilt werden. In der ersten, größeren Gruppe streuen die Werte um etwa 5 %, was im Mittel mit den angegebenen Fehlern von 3-7 % vereinbar ist. Die zweite, kleinere Gruppe wird von den Arbeiten von Gorlov et.al. (26) und Poenitz (13, 28) gebildet, deren Werte um 10-15 % niedriger liegen als die der übrigen Autoren. Diese Abweichung kann nicht mit den angegebenen Fehlern von 4-7 % erklärt werden.

Wie man Abb. 14 entnimmt, bestätigen die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit die höheren Werte der ersten Gruppe. Man findet oberhalb von 750 keV

gute Übereinstimmung mit den sehr sorgfältigen Arbeiten von White (16) und Szabo et.al. (17) sowie mit Smirenkin et.al. (15), Diven (24) und Allen und Ferguson (14). Am unteren Ende des Energiebereichs streuen die Ergebnisse etwas stärker, wobei die neu gemessenen Werte in etwa zwischen denen von Diven und Allen und Ferguson einerseits und White bzw. Szabo et.al. andererseits liegen. Dabei beträgt der Abstand zu den Punkten von Szabo et.al. oder White 3-5 %, was bei entsprechender Berücksichtigung der Meßfehler keine nennenswerte Diskrepanz darstellt.

Die Werte der zweiten Gruppe liegen dagegen erheblich tiefer und sind unvereinbar mit den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit. Den Experimenten dieser Gruppe ist gemeinsam, daß sie alle auf den Wasserstoffstreuquerschnitt als Standard verzichteten. Dies bedeutet vom Aufwand her eine meßtechnische Vereinfachung, allerdings um den Preis einer indirekten Neutronenflußbestimmung.

So verwendeten Gorlov et.al. einen long counter zur Relativmessung des Spaltquerschnitts und normierten den Energieverlauf bei einer Neutronenenergie von 270 keV mit Hilfe einer geeichten Ra-Be-Quelle. Außer den Unsicherheiten dieser Eichung vermindern noch große Absorptionskorrekturen im Spaltdetektor die Meßgenauigkeit.

Die 1968 von Poenitz angegebenen Werte (13) stammen ebenfalls von einer Relativmessung, die im Energiebereich von 30 bis 1100 keV durchgeführt und mit einem Absolutwert des Spaltquerschnitts bei 30 keV normiert wurde. Dies ist im Prinzip nur mit einem Neutronendetektor möglich, dessen Ansprechwahrscheinlichkeit im ganzen Energiebereich konstant ist. Poenitz verwendete einen "grauen" Detektor, welcher diese Forderung nur näherungsweise erfüllte. Der Detektor bestand aus einem großen Wassertank mit Eintrittskanal und außen angebrachten NaJ-Zählern zum Nachweis der 2,2 MeV γ -Strahlung vom Einfang der moderierten Neutronen am Wasserstoff. Wenn der Tank groß genug ist, werden alle einfallenden Neutronen moderiert und eingefangen. Energieabhängige Effekte, wie verschiedene Eindringtiefen und Leckverluste, wurden jedoch nicht experimentell erfaßt, sondern lediglich durch Rechnung korrigiert.

Bei einer zweiten Messung (28) umgab Poenitz das Beschleunigertarget mit einer kugelförmigen Ionisationskammer. Auf diese Weise durchquerten alle

bei der $^{51}\text{V}(p,n)^{51}\text{Cr}$ -Reaktion entstandenen Neutronen die mit ^{235}U ausgekleidete Kammer. Durch den Vergleich der Zählrate in der Kammer und der ^{51}Cr -Aktivität des Targets konnte der Spaltquerschnitt berechnet werden. Diese Methode der assoziierten Aktivität zur Messung des Neutronenflusses ist jedoch nicht unproblematisch, da die Absolutmessung des Neutronenflusses verlagert wurde auf die Absolutmessung der ^{51}Cr -Aktivität. Nähere Einzelheiten über diese Messung und die angebrachten Korrekturen sind nicht veröffentlicht.

Insgesamt ergibt die detaillierte Erörterung der Experimente, daß die vorliegenden Versuche einer Bestimmung des Neutronenflusses unter Verzicht auf den Wasserstoffstreuquerschnitt mit größeren Unsicherheiten verbunden sind. Deshalb erscheint es sinnvoll, denjenigen Messungen, die sich unmittelbar auf den Wasserstoffstreuquerschnitt stützen, eine höhere Zuverlässigkeit zuzusprechen.

Mit Ausnahme der Arbeit von Smirenkin et.al. gehören dazu alle Messungen der oben erwähnten ersten Gruppe. Unter diesen zeichnen sich die Messungen von White und Szabo et.al. dadurch aus, daß sie außer gasgefüllten Protonenrückstoßzählern, deren begrenzte Eignung in Abschnitt 3 beschrieben wurde, noch weitere Methoden zur Bestimmung des Neutronenflusses verwenden. Bei beiden ist dies - siehe Abschnitt 2 - die Methode der assoziierten Teilchen und bei Szabo et.al. außerdem noch die Manganbadtechnik.

Es ist deshalb letzten Endes nicht überraschend, daß auch die in der vorliegenden Arbeit bestimmten Werte des Spaltquerschnitts mit den Arbeiten der ersten Gruppe übereinstimmen. Sie unterscheiden sich jedoch von den früheren Arbeiten in zwei Punkten:

1. konnte der Spaltquerschnitt von ^{235}U durch eine verbesserte Meßtechnik mit größerer Genauigkeit als bisher relativ zum Wasserstoffstreuquerschnitt als Standard festgelegt werden;
2. stellen die neuen Werte erstmals eine ausreichend geschlossene Beschreibung des Energieverlaufs von σ_f zwischen 500 und 1200 keV dar.

7.2 STATUS DES SPALTQUERSCHNITTS

Die von den Anwendern in der Reaktorphysik aufgestellten Forderungen über die benötigte Genauigkeit des Spaltquerschnitts von ^{235}U liegen, wie in Abschnitt 1 erwähnt wurde, zwischen 1 und 3 %. Diese Genauigkeit konnte mit den früheren Messungen nicht erreicht werden, selbst dann nicht, wenn man die Auswertung nur auf die Werte aus der ersten Gruppe beschränkte. Außerdem bildeten die niedrigen Spaltquerschnitte der zweiten Gruppe einen erheblichen Unsicherheitsfaktor.

Mit den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit wurden die Absolutwerte der ersten Gruppe eindeutig bestätigt. Wegen der bereits diskutierten größeren Unsicherheit in der Neutronenflußbestimmung müssen deshalb die Ergebnisse der zweiten Gruppe bei einer zusammenfassenden Auswertung des Datenmaterials mit einem geringeren Gewicht gewertet werden. Ein zusätzlicher Hinweis für die Berechtigung dieser Annahme besteht darin, daß Benzi et.al. (19) nur mit den höheren Spaltquerschnitten der ersten Gruppe in den eingangs erwähnten Rechnungen die experimentell gefundenen Kritikalitäten gut wiedergeben konnten. Weiterhin können mit dem jetzt erstmals bestimmten Energieverlauf und den genaueren Absolutwerten des Spaltquerschnitts jene Unsicherheiten reduziert werden, die seither bei der Zusammenfassung vereinzelter Werte aus verschiedenen Messungen entstanden. Es müßte nun durch eine sorgfältige Auswertung der Messungen der ersten Gruppe und der vorliegenden Arbeit möglich sein, die Unsicherheit des Spaltquerschnitts im betrachteten Energiebereich auf etwa 3 % einzuschränken. Damit wären die Anforderungen der Reaktorphysik zumindest teilweise erfüllt.

Eine Unsicherheit von lediglich 3% würde darüberhinaus bedeuten, daß der Spaltquerschnitt von ^{235}U auch im oberen keV-Bereich zunehmend als Referenzquerschnitt zweiter Ordnung anerkannt wird. Er würde wegen seiner experimentellen Vorteile in solchen Fällen nützlich sein, wo Neutronenflüsse auf etwa 5 % genau bestimmt werden müssen. Der Anstieg im Spaltquerschnitt zwischen 900 und 1000 keV ist in diesem Zusammenhang von Nachteil und muß bei Messungen mit entsprechender Energieauflösung korrigiert werden.

Mit einer Reduzierung der Unsicherheit des Spaltquerschnitts von ^{235}U auf 3 % ist eine gewisse Grenze der derzeitigen, experimentellen Möglichkeiten erreicht. Aufgrund der Diskussion der früheren Arbeiten in Abschnitt 2 wurde

für die Meßmethode der vorliegenden Arbeit die Vermeidung bzw. weitgehende Einschränkung von Korrekturen gefordert. Dadurch konnte die Unsicherheit im Endergebnis verhältnismäßig klein gehalten werden, was ein Vergleich von Tab. 1 und 7 zeigt. Eine weitere Verbesserung der Meßgenauigkeit kann nur mit Hilfe eines kollimierten Neutronenstrahls sowie mit dünneren Spaltproben erreicht werden, da dann die Streukorrektur k vermieden und die Ansprechwahrscheinlichkeit ϵ_{γ} verbessert würde. Wegen der bei den hohen Neutronenenergien notwendigen Länge des Kollimators müßte der dann wesentlich kleinere Raumwinkel zwischen Neutronenquelle und Spaltprobe durch entsprechend längere Meßzeiten ausgeglichen werden. Ebenso kann auch eine Verkleinerung der Probendicke und des statistischen Fehlers nur durch längere Meßzeiten ausgeglichen werden. Dies bedeutet bei den herkömmlichen Neutronenquellen, daß für eine Verbesserung der Meßgenauigkeit der vorliegenden Arbeit von 3 auf 2 % Meßzeiten von 4 - 6 Monaten notwendig wären. Daraus läßt sich schließen, daß bei vertretbarem Aufwand die Meßgenauigkeit grundsätzlich von der Intensität der Neutronenquelle her begrenzt ist.

8. INTERPRETATION DES SPALTQUERSCHNITTS

8.1 VORBEMERKUNGEN

Im folgenden sollen die für eine physikalische Diskussion des gemessenen Spaltquerschnitts von ^{235}U wichtigen Aspekte der Kernspaltung kurz dargelegt werden.

Führt man einem schweren Kern mit $A > \approx 200$ Anregungsenergie zu, so kann er sich deformieren, wobei ein Teil der Anregungsenergie als Deformationsenergie verbraucht wird. Nach Erreichen einer kritischen Deformation, dem Sattelpunkt, wird der Kern instabil und spaltet. Bei der Behandlung dieses Vorgangs mit dem Tröpfchenmodell (10) wird die Gestalt des Kerns in eine Reihe von Legendrepolylenen entwickelt:

$$R = R_0 \left(1 + \sum_i \beta_i P_i(\cos\theta) \right) \quad (17)$$

Die Koeffizienten β_i werden als Deformationsparameter bezeichnet. In einer dreidimensionalen Darstellung der potentiellen Energie über den Deformationsparametern β_2 und β_4 ergibt sich eine Potentiallandschaft, in welcher der Sattelpunkt als ausgeprägte Paßhöhe erscheint. Der Schnitt durch diese Landschaft entlang der Tallinie stellt die Potentialbarriere gegen Spaltung in Abhängigkeit von der Kerndeformation dar. Ein schematisches Beispiel zeigt Abb. 15a.

Eine genauere Rechnung, wie sie erstmals Strutinsky (78) unter Berücksichtigung von Schalen- und Paar-Effekten durchführte, ergibt eine modifizierte Potentialbarriere in Form einer Doppelhöckerkurve (siehe auch 79,80,81,82, 83). Diese Form der Potentialbarriere ermöglicht die Interpretation der unterhalb der eigentlichen Spaltschwelle gefundenen Resonanzen im Spaltquerschnitt (84) als Zustände im zweiten Minimum. Die zu erwartende, endliche Lebensdauer dieser Zustände, der sogenannten Formisomeren, konnte ebenfalls für eine Reihe von Kernen nachgewiesen werden (85). Eine eindrucksvolle Bestätigung der Formisomerenhypothese ergibt sich aus der Arbeit von Specht et.al.(86), wonach das aus dem Niveauabstand von Rotationszuständen berechnete Träg-

heitsmoment für die Isomeren entsprechend der größeren Deformation etwa doppelt so groß ist wie im Grundzustand.

Das Auftreten von Formisomeren und ihr Einfluß auf den Spaltvorgang hängt jedoch stark davon ab, welche der Barrieren E_A oder E_B höher bzw. breiter ist. Wenn, so wie im Fall von ^{236}U (Abb. 15b) die Barriere E_B höher und breiter ist als E_A (79,87,88), so wird der Spaltvorgang durch das Tröpfchenmodell mit hinreichender Genauigkeit beschrieben. Deshalb soll im folgenden die einfachere Potentialbarriere der Abb. 15a verwendet werden.

Aufgrund der Paarkorrelation entsteht in den gg-Kernen eine Energielücke 2Δ zwischen dem Grundzustand und den Einteilchenzuständen, entsprechend der Energie, die zum Aufbrechen eines Nukleon-Paares erforderlich ist. In dem gg-Compoundkern ^{236}U , der bei der Spaltung von $^{235}\text{U} + n$ entsteht, ergibt sich aus der Bindungsenergie für die Energielücke im Grundzustand ein Wert von $2\Delta_0 \approx 1,2$ MeV. Innerhalb dieser Energielücke sind nur kollektive Anregungen des Kerns möglich. Da ^{236}U eine Grundzustandsdeformation besitzt, bedeutet dies, daß sowohl Vibrations- als auch Rotationszustände in der Energielücke auftreten können. Diese Zustände unterscheiden sich durch den Grad der inneren Anregung des Kerns, welcher durch die Projektion K des inneren Drehimpulses auf die Symmetrieachse gekennzeichnet ist.

Für Rotationszustände gilt die einfache Beziehung

$$E_{\text{rot}} = \frac{\hbar^2}{2\Theta} \left[I(I+1) - K^2 \right] \quad (18)$$

wobei Θ das Trägheitsmoment des Kerns ist. Für den Gesamtdrehimpuls muß stets $I \geq K$ erfüllt sein. Zu jedem Wert des inneren Drehimpulses, ausgedrückt durch die Quantenzahl K , gibt es nach Gleichung (17) eine Rotationsbande; entsprechendes gilt für die vorkommenden Vibrationsbanden. Man erwartet daher innerhalb der Energielücke ein Anregungsspektrum, das aus verschiedenen Rotations- und Vibrationsbanden zusammengesetzt ist und in dem mit zunehmender Anregungsenergie immer höhere Werte von K auftreten. Am Ende der Energielücke nimmt die Niveaudichte durch das Auftreten von Einteilchenzuständen stark zu. In Abb. 15a ist das Anregungsspektrum am Sattelpunkt schematisch angedeutet.

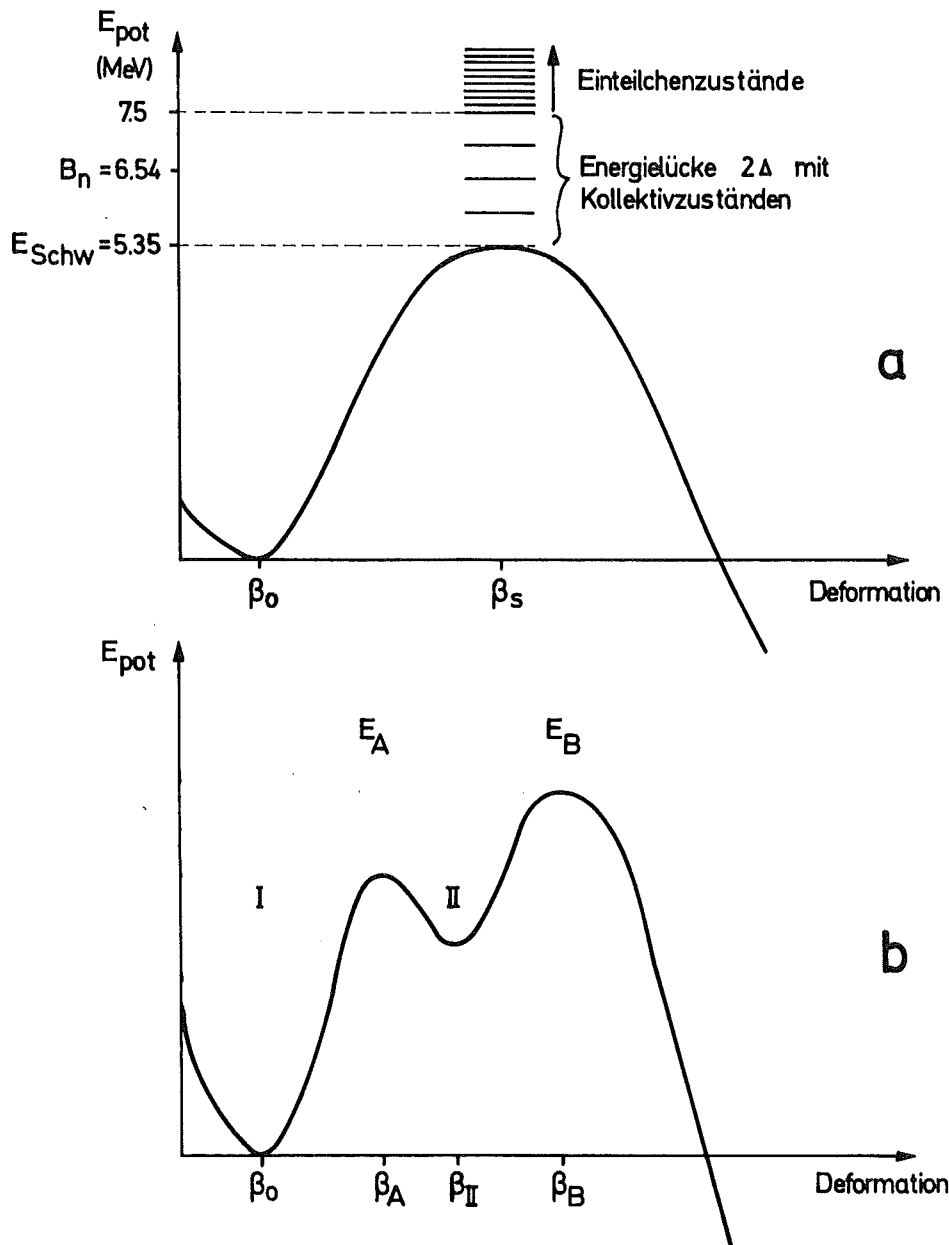


Abb. 15 a) Spaltbarriere nach dem Tröpfchenmodell
 b) auf Schalen- und Paareffekte korrigierte Spaltbarriere von ^{235}U

Wird die Spaltung von Neutronen ausgelöst, so wird dem Compoundkern mindestens die Neutronenbindungsenergie B_n von etwa 6,5 MeV übertragen. Das bedeutet, daß man auf diese Weise keinen der tiefliegenden kollektiven Zustände anregt, sondern sich bereits in einem Gebiet mit relativ dichter Niveaufolge befindet. So zeigt der Spaltquerschnitt bis zu einigen hundert eV eine ausgeprägte Resonanzstruktur. Eine Analyse dieser Resonanzen zeigt jedoch (6-9), daß nur wenige Kanäle zur Reaktion beitragen. Bei weiterer Zunahme der Neutronenenergie wird durch Überlappen der Resonanzen der Spaltquerschnitt immer glatter. Man erwartet jedoch, daß neu verfügbar werdende K-Quantenzahlen sich auf 2 Arten beobachten lassen. So sollte durch das Hinzukommen des neuen Spaltkanals die Reaktionsbreite Γ_f und damit gemäß Gleichung (1) auch der Spaltquerschnitt σ_f zunehmen. Außerdem sollte sich durch eine neue K-Quantenzahl auch die Winkelverteilung der Spaltfragmente relativ zur Einfallsrichtung der Neutronen ändern. Diese Abhängigkeit wird durch den vom einfallenden Neutron übertragenen Bahndrehimpuls l hervorgerufen, der stets senkrecht auf der Einfallsrichtung des Neutrons steht. Dadurch wird der Gesamtdrehimpuls J des Systems Kern + Neutron ebenfalls vorwiegend senkrecht zu dieser Einfallsrichtung eingestellt.

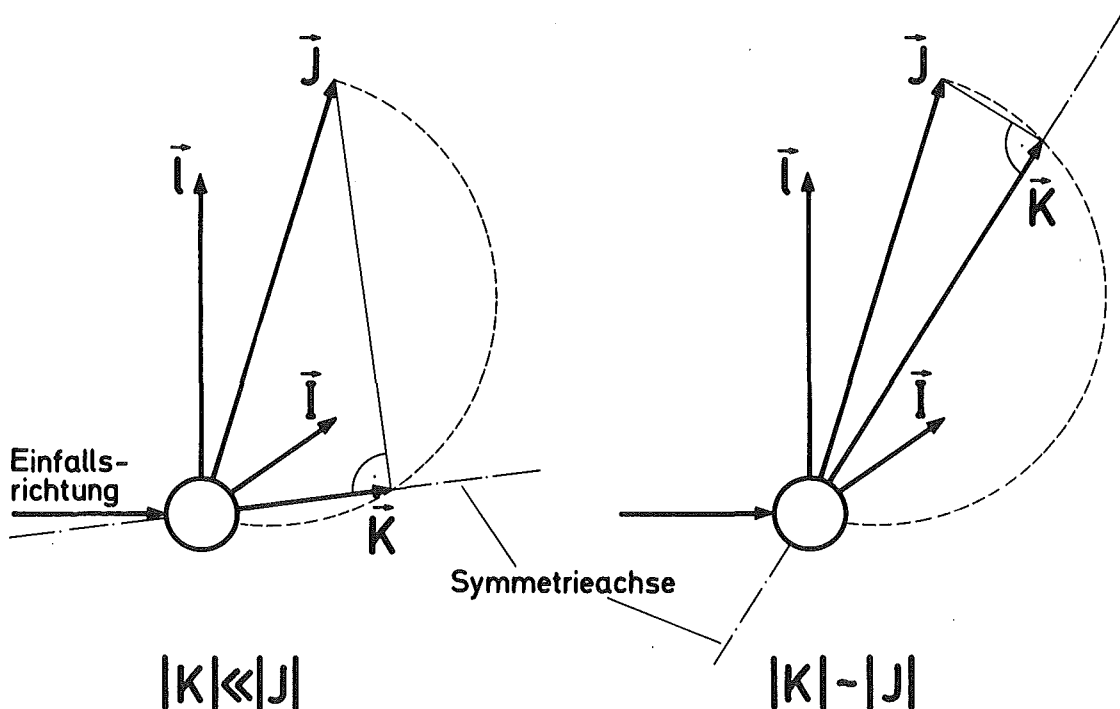


Abb. 16 Abhängigkeit der Winkelverteilung der Spaltfragmente von der Quantenzahl K .

In Abb. 16 ist die Ausrichtung der Symmetrieachse des Kerns für kleine und große Werte von K skizziert. Wenn K klein gegen J ist, liegt die Symmetrieachse vorwiegend parallel zur Einfallrichtung, für $K \approx J$ dagegen vorwiegend senkrecht dazu. Da sich die Spaltfragmente auf der Symmetrieachse voneinander wegbewegen, ergibt sich daraus eine Winkelverteilung der Fragmente, aus deren Verhalten auf die am Spaltprozeß beteiligten K -Quantenzahlen geschlossen werden kann. Dabei wird häufig das Verhältnis der unter 0 und 90° zur Einfallrichtung emittierten Fragmente als Anisotropie $A = \frac{d\sigma_f(0^\circ)}{d\sigma_f(90^\circ)}$ bezeichnet. Entsprechend Abb. 16 erwartet man beim Hinzukommen einer höheren K -Quantenzahl eine bevorzugte Entstehungsrichtung der Fragmente senkrecht zur Einfallrichtung, d.h. eine Abnahme von A .

Leider sind im (n,f) -Prozeß beim Einsetzen eines neuen Spaltkanals weder der Anstieg im Spaltquerschnitt noch die Änderung der Anisotropie eindeutig nachweisbar. Das liegt daran, daß ein neuer Spaltkanal nicht bei einer scharf definierten Energie sondern über ein Intervall von ca. 0.5 MeV (89) wirksam wird, da sich aufgrund des Tunneleffekts die Durchlässigkeit der Potentialbarriere nicht sprunghaft ändert. Deshalb läßt sich ein Anstieg im Spaltquerschnitt, der den bereits unterhalb der Neutronenbindungsenergie offenen Kanälen überlagert ist, nicht mehr lokalisieren. Was die Beobachtung der Winkelanisotropie angeht, so reichen die von den Neutronen eingebrachten Bahndrehimpulse nicht aus, um eine deutliche Anisotropie zu erzeugen.

Wesentlich bessere Möglichkeiten zur Untersuchung des Spaltprozesses bieten dagegen diejenigen Reaktionen, bei denen geladene Teilchen zur Erzeugung des Compoundkerns ^{236}U verwendet werden, wie z.B. (d,pf) - oder (t,pf) -Reaktionen. Dabei wird nach dem Einschuß eines Deuterium- bzw. Tritiumkerns bekannter Energie die ausgelöste Spaltung in Koinzidenz mit dem gleichzeitig entstehenden Proton nachgewiesen. Aus der gemessenen Energie des Protons und dem Q -Wert der Reaktion läßt sich die auf den Compoundkern übertragene Anregungsenergie bestimmen. Diese kann in weiten Grenzen variieren, so daß man in der Lage ist, die Spaltschwellen genau zu vermessen. Außerdem sind die in diesen Reaktionen übertragenen Bahndrehimpulse sehr hoch. Dies führt zu großen Effekten in der Anisotropie und ermöglicht genaue Angaben über die

Lage der kollektiven Zustände. Britt et.al. (90) bestimmten auf diese Weise durch eine sorgfältige Analyse der Winkelverteilungen von Spaltfragmenten aus (d,pf)- und (t,pf)-Reaktionen das Spektrum der Kollektivzustände in der Energielücke. Mit diesen Daten konnte eine von Lynn (91) aufgestellte Systematik dieser Zustände für einen gg-Kern bestätigt und verbessert werden.

8.2 NEUBESTIMMUNG DER ENERGIELÜCKE AM SATTELPUNKT

Am Ende der Energielücke, d.h. mit dem ersten Auftreten von Ein-Teilchen-Zuständen, nimmt die Niveaudichte stark zu. Wegen der damit verbundenen Zunahme der Spaltkanäle kann ein Anstieg im Spaltquerschnitt erwartet werden. Außerdem bewirkt das Auftreten von Einteilchenzuständen höhere K-Quantenzahlen ($K \geq 4$), entsprechend dem höheren Anteil der inneren Anregung des Kerns. Wie aus Abb. 16 ersichtlich, ist damit eine Abnahme der in Abschnitt 8.1 eingeführten Winkelanisotropie A der Spaltfragmente verbunden. Aus der experimentell in (d,pf)- und (t,pf)-Reaktionen gemessenen Winkelverteilung der Spaltfragmente konnten Britt, Rickey und Hall (90) das Ende der Energielücke im Compoundkern ^{236}U bestimmen. Sie fanden $E^\Delta = 7,45 \pm 0,13$ MeV, wobei E^Δ vom Grundzustand aus gerechnet ist. Die Unsicherheit dieses Wertes rührt von der begrenzten Energieauflösung des Experiments her.

Um dieselbe Anregungsenergie in einer (n,f)-Reaktion zu erzeugen, benötigt man Neutronenenergien von ungefähr 1 MeV. Bei dieser Energie ist auch der vom Neutron übertragene Bahndrehimpuls ausreichend, um eine merkbare Anisotropie der Spaltfragmente beobachten zu können. Entsprechende, systematische Messungen wurden im Energiebereich von 0,2 bis 2,6 MeV von Nesterov et.al. (77) durchgeführt. In einem früheren Vergleich (15) konnte jedoch wegen der unzureichenden Spaltquerschnittsdaten keine Korrelation zwischen σ_f und der Winkelanisotropie der Spaltfragmente nachgewiesen werden.

In Abb. 17 sind die Anisotropie-Werte von Nesterov et.al. durch die Messungen von Leachman und Blumberg (92) und Simmons und Henkel (93) ergänzt worden und zusammen mit den in der vorliegenden Arbeit gemessenen Spaltquerschnitten

dargestellt. Selbst unter Berücksichtigung der größeren Unsicherheit in den Anisotropie-Werten findet man eine eindeutige Korrelation mit dem Verlauf des Spaltquerschnitts, womit die Annahme bestätigt wird, daß es sich dabei um das Ende der Energielücke handelt. Eine zusätzliche Aussage darüber ermöglicht die relativ kleine Breite des Anstiegs im Spaltquerschnitt von $\approx 50 - 100$ keV. Dies würde, falls man die Struktur im Spaltquerschnitt einem neuen kollektiven Zustand zuschreiben wollte, einer Dicke der Potentialbarriere von höchstens 150 keV entsprechen. Da jedoch aus den Rechnungen von Britt et.al. (90), von Usachev et.al. (89), sowie von Weigmann und Theobald (88) hervorgeht, daß die Dicke der Potentialbarriere für einen kollektiven Zustand zwischen 300 und 700 keV liegt, kann eine solche Zuordnung ausgeschlossen werden.

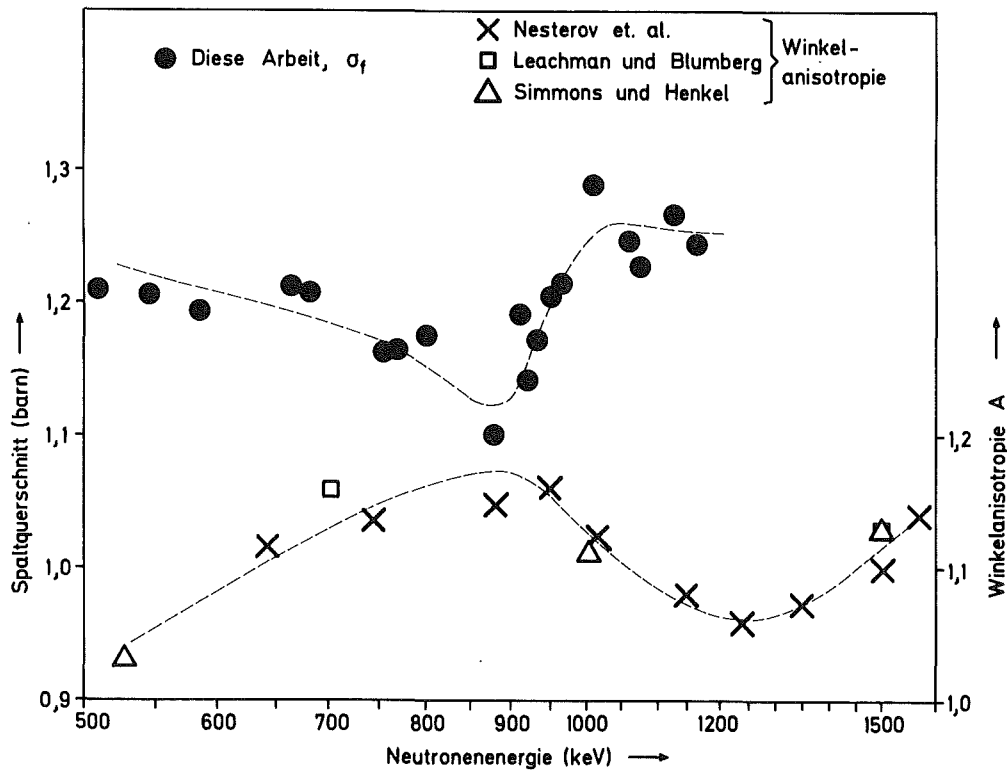


Abb. 17 Korrelation zwischen dem Spaltquerschnitt σ_f und der Winkel-anisotropie $A = \frac{d\sigma_f(0^\circ)}{d\sigma_f(90^\circ)}$ für ^{236}U am Ende der Energielücke.

Weitere Hinweise auf das Ende der Energielücke gibt die Arbeit von Blyumkina et.al. (94), in der das Verhalten von $\bar{\nu}$, der mittleren Zahl der pro Spaltung freiwerdenden Neutronen und $\overline{E_{kin}}$, der mittleren kinetischen Energie der Spaltfragmente in Abhängigkeit von der Neutronenenergie untersucht wird. Die Autoren finden außer den korrelierten Strukturen im Spaltquerschnitt und der Winkelanisotropie auch solche im Energieverlauf von $\bar{\nu}$ und $\overline{E_{kin}}$, wobei $\bar{\nu}$ am Ende der Energielücke zu- und $\overline{E_{kin}}$ abnimmt.

Nach Strutinsky und Pavlinchuk (95) werden die Energieverhältnisse bei der Spaltung durch die folgende Gleichung wiedergegeben:

$$E - E_f = E_U + E_{kin} \quad (19)$$

E_U ist dabei die innere Anregungsenergie, E_{kin} die kinetische Energie der Fragmente, E_f die Spaltschwelle und E die gesamte Anregungsenergie des Kerns. Mit dieser Gleichung läßt sich das Verhalten von $\bar{\nu}$ und $\overline{E_{kin}}$ zwanglos erklären, denn am Ende der Energielücke nimmt die innere Energie E_U des Kerns und damit auch der Fragmente zu, woraus sich eine größere Zahl von emittierten Neutronen ergibt. Gleichzeitig nimmt wegen Gleichung (19) die mittlere kinetische Energie ab.

Eine sorgfältige Auswertung des Spaltquerschnitts von ^{235}U ergibt für die Lage des dem Ende der Energielücke zugeordneten Anstiegs $E_n^\Delta = 945 \pm 25$ keV. Da die Bindungsenergie des Neutrons aus der γ -Spektroskopie (96) mit $B_n = 6545 \pm 1$ keV sehr genau bekannt ist, findet man das Ende der Energielücke bei einer Anregungsenergie von

$$E^\Delta = 7,490 \pm 0,025 \text{ MeV.}$$

Daraus ergibt sich die Möglichkeit, eine Neubestimmung der Energielücke $2\Delta_f$ am Sattelpunkt von ^{236}U mit verbesserter Genauigkeit durchzuführen. Britt et.al. geben in ihrer Arbeit (90) einen Wert von $2\Delta_f = 2,10 \pm 0,15$ MeV an, den sie als Differenz zwischen dem aus der Analyse der Anisotropie gewonnenem Ende der Energielücke E^Δ und der aus dem Spaltquerschnitt bestimmten Schwelle E_f berechnen. Mit dem Ergebnis der vorliegenden Arbeit kann jetzt der Wert für die Energielücke aus dem Spaltquerschnitt

allein bestimmt werden.

Dazu benötigt man einen möglichst genauen Wert der Spaltschwelle. Dieser kann im Fall von ^{236}U nur über die $^{234}\text{U}(t, pf)^{236}\text{U}$ -Reaktion bestimmt werden; denn Specht et al. (97) haben gezeigt, daß durch die (d, pf)-Reaktion wegen der negativen Parität des Grundzustands von ^{235}U die tiefsten kollektiven Zustände positiver Parität ($K=0^+$) nur mit sehr kleiner Wahrscheinlichkeit besetzt werden. Deshalb erscheinen in der (d, pf)-Reaktion die Zustände mit $K=0^-$ als Spaltschwelle, die jedoch ungefähr 0,5 MeV höher liegen als die eigentliche Spaltschwelle, welche von den Zuständen mit $K=0^+$ gebildet wird. Aufgrund dieses Umstandes wird an manchen Stellen eine um 0,5 MeV zu hohe Spaltschwelle für ^{235}U angegeben.

Eine Bestimmung der Spaltschwelle über die (t, pf)-Reaktion wurde von zwei Arbeitsgruppen durchgeführt. Britt et al. (90) finden als optimale Parameter bei der Anpassung ihrer Rechnung an den experimentellen Spaltquerschnitt $E_f = 5,35 \pm 0,05$ MeV für die Spaltschwelle und $\hbar\omega = 0,5$ MeV für die Dicke der Potentialbarriere. Der letzte Wert wird bestätigt durch die Analyse von Usachev (89) mit $\hbar\omega = 0,58$ MeV. Eine zweite Messung der Spaltschwelle wird von Eccleshall und Yates (98) berichtet. Eine Renormierung ihres Ergebnisses mit Hilfe des genaueren Q-Wertes der (t, pf)-Reaktion aus der Arbeit von Britt et al. ergibt für die Spaltschwelle $E_f = 5,34 \pm 0,15$ MeV. Unter der eingangs erwähnten Voraussetzung, daß das Tröpfchenmodell als gute Näherung gilt, kann für die Spaltschwelle von ^{236}U angenommen werden $E_f = 5,35 \pm 0,05$ MeV.

Zusammen mit dem in der vorliegenden Arbeit bestimmten Wert für das obere Ende der Energielücke $E^{\Delta} = 7,490 \pm 0,025$ MeV findet man für die Energielücke am Sattelpunkt von ^{236}U

$$2\Delta_f = 2,14 \pm 0,06 \text{ MeV.}$$

Dieses Ergebnis ist in guter Übereinstimmung mit dem schon erwähnten Wert von $2,10 \pm 0,15$ MeV, den Britt et al. aus der Winkelverteilung der Fragmente bei (d, pf)- und (t, pf)-Reaktionen bestimmten. Außer der direkten experimentellen Bestimmung von $2\Delta_f$ gibt es ein weiteres Verfahren, nach dem Griffin (99) und Smirenkin et al. (100) vorgegangen sind. Sie erhalten Werte für $2\Delta_f$ von 2,5 bzw. 1,5 MeV aus dem Zusammenhang

von Δ_f mit E_{crit} , der kritischen Anregungsenergie, oberhalb der die Nukleonen als nicht wechselwirkend betrachtet werden können. Diese indirekte Bestimmung von Δ_f ist mit relativ großen Unsicherheiten behaftet, da auch E_{crit} nicht direkt gemessen werden kann.

8.3 ENERGIELÜCKE UND PAARUNGSENERGIE

Ein Vergleich der Werte für die Energielücke im Grundzustand ($2\Delta_0 = 1,2$ MeV) und am Sattelpunkt ($2\Delta_f = 2,14$ MeV) zeigt, daß sich die Stärke der Paarkorrelation mit der Deformation ändert. Diese Erscheinung, über die nur sehr wenig experimentelle Information vorliegt, ist für die Berechnung von Potentialbarrieren der in Abb. 15b gezeigten Art von Bedeutung. Der Verlauf der potentiellen Energie mit der Deformation schwerer Kerne wird zwar in klassischer Näherung (Abb. 15a) durch das Tröpfchenmodell (10) beschrieben, für die Entstehung der Doppelhöckerkurve sowie für deren Form sind jedoch die Korrekturen durch Schalen- und Paareffekte entscheidend.

Eine grundlegende Beschreibung der Paarkorrelation und der Paarenergie gelang Bohr, Mottelson und Pines (101) durch die Übertragung der für die Beschreibung der Supraleitung entwickelten BCS-Theorie (102) auf die Verhältnisse im Kern. Danach führt die kurzreichweitige Komponente der Restwechselwirkung im Kern zu stark korrelierten Wellenfunktionen zwischen Nukleonen, die in Schalenmodellbahnen gepaart sind. Diese korrelierten Zustände liegen energetisch tiefer als entsprechende Zustände ohne Paarung. Für die Paarungsenergie ergibt sich (79):

$$E_{\text{BCS}} = \sum_{\mu} 2v_{\mu}^2 \epsilon_{\mu} - \frac{\Delta^2}{G} \quad (20)$$

Hier bedeuten

v_{μ}^2	die Besetzungswahrscheinlichkeit für gepaarte Zustände,
ϵ_{μ}	die Einteilchenenergie,
Δ	den gap-Parameter, welcher der halben Breite der Energielücke entspricht,
G	das Paarkraftmatrixelement, das die Stärke der Kopplung beschreibt und
μ	die Quantenzahlen der Niveaus

Die Paarungsenergie E_{BCS} ist danach abhängig von Δ , G und der bei der Ausführung der Summe wichtigen Niveauverteilung an der Fermigrenze. Bei der Berechnung der Paarungsenergie am Sattelpunkt muß deshalb der Einfluß der Deformation auf diese Parameter berücksichtigt werden. Das kann aus Mangel an experimentellen Daten nur mit Hilfe von Modellrechnungen geschehen. Die Niveauverteilung am Sattelpunkt ergibt sich dabei zwangsläufig aus dem verwendeten Modell. Das Verhalten des gap-Parameters Δ hängt dagegen stark davon ab, welche Annahme für das Verhalten von G bei zunehmender Deformation gemacht wird.

Strutinsky und Pavlinchuk (95) betrachten das Paarkraftmatrizelement auch bei zunehmender Deformation als konstant ($G = \text{konst.}$). Sie nehmen als experimentellen Wert für die Energielücke am Sattelpunkt $2\Delta_f = 1,5 \text{ MeV}$ und erklären die Differenz zum Grundzustand mit $2\Delta_o = 1,2 \text{ MeV}$ durch eine entsprechende Änderung in der Niveauverteilung. Die Grenzen dieser Annahme werden dadurch sichtbar, daß auf diese Weise der neubestimmte Wert von $2\Delta_f = 2,14 \text{ MeV}$ nicht reproduziert werden kann und sich außerdem für die Gesamtenergie bei großen Deformationen zu hohe Werte ergeben (79, 103).

Diese Schwierigkeiten werden in der Arbeit von Nilsson et.al. (80) vermieden, in der das Paarkraftmatrizelement G direkt proportional zur Oberfläche S des Kerns angenommen wird. Dieser Zusammenhang entspricht der vereinfachten Annahme, daß der Beitrag zur Paarenergie aus dem inneren Bereich des Kerns vernachlässigbar ist und daß die Paarung ausschließlich an der Oberfläche des Kerns zustande kommt. Diese Vorstellung stützt sich darauf, daß die anziehende Wechselwirkung zwischen Nukleonen bei den hohen Stoßgeschwindigkeiten im Kerninnern sehr klein wird oder sogar das Vorzeichen ändert (104). Für die Abhängigkeit des gap-Parameters von der Oberfläche ergibt sich näherungsweise $\Delta \approx S^3$. Die mit der oberflächenabhängigen Paarkraft durchgeführten Rechnungen ergeben am Sattelpunkt größere Werte für Δ_f und ebenso eine ausreichende Absenkung der Gesamtenergie bei großen Deformationen.

Theoretische Arbeiten zur Abhängigkeit der Paarkorrelation von der Oberfläche (105, 106) ergaben, daß für unendlich ausgedehnte Kernmaterie die Energielücke sehr klein, d.h. die Paarung praktisch aufgehoben wird.

Dies ist ebenfalls ein Hinweis für den starken Einfluß der Kernoberfläche auf die Paarung.

Brack et.al. (79) haben ausführliche Rechnungen zur Deformation schwerer Kerne angestellt und dabei beide Annahmen für das Verhalten des Paarkraftmatrixelements, sowohl $G = \text{konst.}$ als auch $G \approx S$, verwendet. Ausgehend von den Anfangsdaten der Niveauverteilung, dem Paarkraftmatrixelement G_0 und dem gap-Parameter Δ_0 im Grundzustand wurden die entsprechenden Größen für die Sattelpunktdeformation berechnet. Die Änderung der Niveauverteilung wurde dabei mit Hilfe eines Wood-Saxon-Modells beschrieben. Tabelle 8 zeigt einen Vergleich der Ergebnisse (103) für die von den Absolutwerten unabhängige relative Änderung der Parameter S , G und Δ zwischen Grundzustand und Sattelpunkt mit dem experimentellen Wert von Δ_f/Δ_0 im Fall von ^{236}U .

	S_f/S_0	G_f/G_0	Δ_f/Δ_0
$G = \text{konst.}$	1.095	1.0	1.23
$G \approx S$	1.095	1.095	1.66
experimenteller Wert der vorliegenden Arbeit	-	-	1.78

Tab. 8 Vergleich von Modellrechnungen mit dem experimentellen Wert für die Änderung des gap-Parameters zwischen Grundzustand und Sattelpunkt von ^{236}U

Aus der Tab. 8 ergibt sich unmittelbar, daß im Rahmen dieser Rechnung nur die Annahme $G \approx S$ den Neubestimmten gap-Parameter Δ_f richtig wiedergibt. Es zeigt sich jedoch auch, daß der gap-Parameter nicht nur von G , sondern auch von der Niveauverteilung sehr empfindlich abhängt. Dies kommt in Tab. 8 durch die Änderung von Δ bei konstantem G zum Ausdruck. Obwohl deshalb das Verhalten des Paarkraftmatrixelements mit der Deformation nicht eindeutig bestimmt werden kann, führt die Untersuchung im Fall von ^{236}U zu dem Schluß, daß zur Beschreibung des experimentell gefundenen gap-Parameters die Annahme einer oberflächenabhängigen Paarkraft notwendig ist.

9. ZUSAMMENFASSUNG

Der Spaltquerschnitt von ^{235}U wurde für Neutronenenergien zwischen 500 und 1200 keV an sieben Punkten absolut bestimmt. Mit weiteren 12 relativ gemessenen Werten konnte der Energieverlauf in diesem Bereich erstmals in ausreichender Weise beschrieben werden. Die Unsicherheit der Absolutwerte liegt zwischen 2,6 und 3,4 %, die mittlere Abweichung der Relativwerte vom Energieverlauf zwischen 0,9 und 2,1 %.

Die Meßmethode war so angelegt, daß durch die Verwendung eines neu entwickelten Protonenrückstoßzählers und einer schnell gepulsten Neutronenquelle die notwendigen Korrekturen und damit die Meßfehler auf ein Mindestmaß reduziert wurden. Außerdem konnten durch eine Vielzahl von Einzelmessungen mit verschiedenen Proben und Detektoransprechwahrscheinlichkeiten systematische Fehler vermieden werden, wie die jeweils konsistenten Ergebnisse gezeigt haben. Eine weitere Verbesserung der Meßgenauigkeit könnte nur durch solche Maßnahmen erreicht werden, für deren Durchführung ein wesentlich höherer Neutronenfluß benötigt würde.

Die früheren Arbeiten können aufgrund der Ergebnisse in zwei Gruppen eingeteilt werden. In der ersten, größeren Gruppe streuen die Werte um etwa 5 %, was im Mittel mit den angegebenen Fehlern von 3 - 7 % vereinbar ist. Die Werte der zweiten Gruppe liegen jedoch um 10 - 15 % niedriger, wobei die Fehlerangaben mit 4 - 7 % viel kleiner sind als die Abweichung von den übrigen Spaltquerschnitten. Die in der vorliegenden Arbeit gemessenen Werte bestätigen den höheren Verlauf des Spaltquerschnitts. Es besteht innerhalb der Fehlergrenzen gute Übereinstimmung mit den Messungen von White (16) und Szabo et.al. (17).

Im Energieverlauf des Spaltquerschnitts zeigte sich bei 1 MeV ein steiler Anstieg von ungefähr 10 %. In Verbindung mit einer entsprechenden Struktur in der Winkelverteilung der Spaltfragmente läßt sich daraus schließen, daß bei dieser Energie das Ende der Energielücke im Compoundkern ^{236}U liegt. Auf diese Weise war es möglich, den gap-Parameter Δ_f am Sattelpunkt mit verbesserter Genauigkeit erstmals vollständig mit Hilfe des Spaltquerschnitts zu bestimmen. Der gegenüber dem Wert am Grundzustand deutlich

größere gap-Parameter am Sattelpunkt wurde mit den Ergebnissen einer theoretischen Untersuchung über Paareffekte in schweren deformierten Kernen verglichen, denen verschiedene Annahmen über das Verhalten des Paarkraftmatrixelements mit der Deformation zugrunde lagen. Es zeigte sich, daß der experimentelle Wert durch die Verwendung eines proportionalen Zusammenhangs zwischen Paarkraftmatrixelement und Kernoberfläche am besten wiedergegeben wurde.

10. LITERATURVERZEICHNIS

- (1) D. Hahn und F. Strassmann, Naturwiss. 27, 11 (1939).
- (2) L. Meitner und O.R. Frisch, Nature 143, 239 (1939).
- (3) N. Bohr und J.A. Wheeler, Phys. Rev. 56, 426 (1939).
- (4) R. Ladenburg et.al., Phys. Rev. 56, 168 (1939).
- (5) H.L. Anderson, et.al., Phys. Rev. 55, 511 (1939).
- (6) F.J. Shore und V.L. Sailor, Phys. Rev. 112, 191 (1958).
- (7) C.E. Porter und R.G. Thomas, Phys. Rev. 104, 483 (1956).
- (8) C.W. Reich und M.S. Moore, Phys. Rev. 111, 929 (1958).
- (9) E. Vogt, Phys. Rev. 112, 203 (1958).
- (10) A. Bohr, Proceedings of the United Nations Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy 2, 151, Genf (1955).
- (11) W.D. Allen und R.L. Henkel, "Fast Neutron Data on the Isotopes of Th, U, and Pu", Prog. Nucl. Energy 2, 38, (1958).
- (12) A.J. Deruytter, Neutron Standards and Flux Normalization, AEC Symposium Series 23, S. 221, (1971).
- (13) W.P. Poenitz, Neutron Cross Sections and Technology I, NBS-Spec. Publ.-229, S. 503, Washington D.C. (1968).
- (14) W.D. Allen und A.T.G. Ferguson, Proc. Phys. Sco. 70 A, 573 (1957).
- (15) G.N. Smirenkin, V.G.Nesterov und I.I. Bondarenko, Sov. J. At. Energy 13, 974 (1963).
- (16) P.H. White, J. Nucl. Energy 19, 325 (1965).
- (17) I. Szabo, G. Filippi, J.L. Huet, J.L. Leroy und J.P. Marquette, Neutron Standards and Flux Normalization, AEC Symposium Series 23, S. 257 (1971).
- (18) J.J. Schmidt, Neutron Standards and Flux Normalization, AEC Symposium Series 23, S. 12 (1971).
- (19) V. Benzi, E. Cupini und A. De Matteis, Nuclear Data for Reactors II, S. 531, IAEA, Wien (1970).
- (20) F. Käppeler und E. Pflöschinger, KFK 1313 (1972).
- (21) W.P. Poenitz, Nuclear Data for Reactors II, S. 3, IAEA, Wien, (1970).
- (22) W.G. Davey, Nuclear Data for Reactors II, S. 119, IAEA, Wien, (1970).
- (23) RENDA, Compilation of EANDC Requests for Neutron Data Measurements, EANDC, 85 "U", April 1970.
- (24) B.C. Diven, Phys. Rev. 105, 1350 (1957).
- (25) G.A. Dorofeev und Y.P. Dobrynin, J. Nucl. Energy 5, 217 (1957).

- (26) G.V. Gorlov et.al., J. Nucl. Energy 12, 79 (1960).
- (27) G.F. Knoll und W.P. Poenitz, J. Nucl. Energy 21, 643 (1967).
- (28) W.P. Poenitz, Neutron Standards and Flux Normalization, AEC Symposium Series 23, S. 281 (1971).
- (29) J.E. Brolley und J.L. Fowler in J. Marion und J.L. Fowler, Fast Neutron Physics I, S. 73, Interscience Publ. Inc., New York (1960).
- (30) J.B. Parker, P.H. White und R.J. Webster, Nucl. Instr. Meth. 23, 61 (1963).
- (31) C.H. Johnson in J. Marion und J.L. Fowler, Fast Neutron Physics I, S. 247, Interscience Publ. Inc., New York, (1960).
- (32) S. J. Bame, Jr., E. Haddad, J.E. Perry, Jr., und R.K. Smith, Rev. Sci. Instr. 28,997 (1957).
- (33) S. J. Bame, Jr., E. Haddad, J.E. Perry, Jr., und R.K. Smith, Rev. Sci. Instr. 31, 911 (1960).
- (34) Ward Whaling, Handbuch der Physik, 34, 193 (1958).
- (35) Hans Bichsel, Phys. Rev. 112, 1089 (1958).
- (36) J.O. Hirschfelder und J.L. Magee, Phys. Rev. 73, 207 (1948).
- (37) C. Williamson und J.P. Boujot, CEA-2189 (1962) Saclay.
- (38) C.M. Huddleston in J. Marion und J.L. Fowler, Fast Neutron Physics I, S. 441, Interscience Publ. Inc., New York (1960).
- (39) A. Sayres und C.S. Wu, Rev. Sci. Instr. 28, 758 (1957).
- (40) M.A.F. Alves und A.J.P.L. Policarpo, Nucl. Instr. Meth. 57, 321 (1967).
- (41) F. Nasyrov und S.V. Linev, Atomnaya Energiya 20, 464 (1966).
- (42) C. Egglar und C.M. Huddleston, Nucleonics 14, 34 (1956).
- (43) Dong H. Nguyen und Lawrence M. Grossman, Nucl. Sci. Eng. 30, 233 (1967).
- (44) E. Pfletschinger und F. Käppeler, Nucl. Sci. Eng. 40, 375 (1970).
- (45) S. Kahn, R. Harman und V. Forgue, Nucl. Sci. Eng. 23, 8 (1965).
- (46) J. Lindhard, M. Scharff und H.E. Schiott, Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat.-Fys, Medd. 33, 14 (1963).
- (47) S. Kahn und V. Forgue, Phys. Rev. 163, 290 (1967).
- (48) R.B. Evans, J.L. Rutherford und R.B. Perez, J. Appl. Phys. 38, 3127 (1967).
- (49) J. Niday, Phys. Rev. 121, 1471 (1961).
- (50) J.B. Cumming und V.P. Crespo, Phys. Rev. 161, 287 (1967).
- (51) K.F. Lauer und V. Verdingh, Nucl. Instr. Meth. 21, 161 (1963).

- (52) O. Jacobi, Kernforschungszentrum Karlsruhe, priv. Mitteilung.
- (53) A. Spornol und O. Lerch, Nucl. Instr. Meth. 32, 293 (1965).
- (54) P.J. De Bièvre und G.H. Debus, Nucl. Instr. Meth. 32, 224 (1965).
- (55) G. Sauerbrey, Z. Physik 155, 206 (1959).
- (56) L. Holland, Vacuum Deposition of Thin Films, S. 141, Chapman and Hall, London (1961).
- (57) H. Liskien, Neutron Standards and Flux Normalization, AEC Symposium Series 23, S. 343 (1971)
- (58) J.H. Gibbons and H.W. Newson in J. Marion und J.L. Fowler, Fast Neutron Physics I, S. 133, Interscience Publ. Inc. New York (1960).
- (59) G. Bruder Müller und P. Wahl, (1962), unveröffentlicht.
- (60) J. Gammel in J. Marion und J.L. Fowler, Fast Neutron Physics II, S. 2209, Interscience Publ. Inc., New York (1960).
- (61) R.E. Fields, R.L. Becker und R.K. Adair, Phys. Rev. 94, 389 (1954).
- (62) W.D. Allen und A.T.G. Ferguson, Proc. Phys. Soc. 68 A, 1077, (1955).
- (63) I. Langner, J.J. Schmidt und D. Woll, KFK 750 (1968).
- (64) A. Langsford und P.J. Clements, Neutron Standards and Flux Normalization, AEC Symposium Series 23, S. 51 (1959).
- (65) G.J. Safford und E. Melkonian, Phys. Rev. 113, 1285 (1959).
- (66) P.H. White, EANDC-53 "S", 301 (1966).
- (67) G.W. Knobloch, EANDC-53 "S", 363 (1966).
- (68) B.B. Rossi und H.H. Staub, Ionization Chambers und Counters, S. 227, McGraw Hill, New York (1949).
- (69) J.M. Blatt und L.C. Biedenhahn, Rev. Mod. Phys. 24, 258 (1952).
- (70) D.I. Garber, L.G. Strömberg, M.D. Goldberg, D.E. Culler, V.M. May, BNL 400, EANDC (US)-138 "U", (1970).
- (71) R.-E. Bandl, (1972), unveröffentlicht.
- (72) R.O. Lane, A.S. Langsdorf, J.E. Monahan und A.J. Elwyn, Ann. of Physics 12, 135 (1961).
- (73) A.S. Langsdorf, R.O. Lane und J.E. Monahan, Phys. Rev. 107, 1077 (1957).
- (74) G. Hrehuss und T. Czibok, Phys. Lett. 28 B, 585 (1969).
- (75) A. Paulsen und H. Liskien, Phys. Lett. 29 B, 562 (1969).
- (76) S. Cierjacks et.al., Phys. Rev. Lett. 23, 866 (1969).
- (77) V.G. Nesterov et.al., Atomnaja Energiya 11, 248 (1968).
- (78) V.M. Strutinsky, Nucl. Phys. A 95, 420 (1967).

- (79) M. Brack, J. Damgaard, A.S. Jensen, H.C. Pauli, V.M. Strutinsky, C.Y. Wong, *Rev. Mod. Phys.* 44, 320 (1972).
- (80) S.G. Nilsson, C.F. Tsang, A. Sobiczewski, Z. Szymański, S. Wycech, C. Gustafson, I.-L. Lamm, P. Möller und B. Nilsson, *Nucl. Phys. A* 131, 1 (1969).
- (81) B.L. Andersen, Friedrich Dickmann und Klaus Dietrich, *Nucl. Phys. A* 159, 337 (1970).
- (82) P. Möller, *Nucl. Phys. A* 192, 529 (1972).
- (83) D. Scharnweber, W. Greiner und U. Mosel, *Nucl. Phys. A* 164, 73 (1971).
- (84) E. Migneco und J.P. Theobald, *Nucl. Phys. A* 112, 603 (1968).
- (85) V. Metag, R. Repnow und P. von Brentano, *Nucl. Phys. A* 165, 289 (1971).
- (86) H.J. Specht, J. Weber, E. Konecny und D. Hennemann, *Phys. Lett.* 41 B, 43 (1972).
- (87) M. Bolsterli, E.O. Fiset, J.R. Nix und J.L. Norton, *Phys. Rev. C* 5, 1050 (1972).
- (88) H. Weigmann und J.P. Theobald, *Nucl. Phys. A* 187, 305 (1972).
- (89) L.N. Usachev, V.A. Pavlinchuk und N.S. Rabotnov, *Sov. J. Atomic Energy* 16, 1242 (1965).
- (90) H.C. Britt, F.A. Rickey und W.S. Hall, *Phys. Rev.* 175, 1525 (1968).
- (91) J.E. Lynn, in *The Theory of Neutron Resonance Reactions*, S. 396, Clarendon Press, Oxford (1968).
- (92) R.B. Leachman und L. Blumberg, *Phys. Rev.* 137 B, 814 (1965).
- (93) J.E. Simmons und R.L. Henkel, *Phys. Rev.* 120, 198 (1960).
- (94) Yu. A. Blyumkina, I.I. Bondarenko, V. F. Kuznetsov, V.G. Nesterov, V.N. Okolovitch, G.N. Smirenkin und L.N. Usachev, *Nucl. Phys.* 52, 648 (1964).
- (95) V.M. Strutinsky und V.A. Pavlinchuk, in *Physics and Chemistry of Fission*, S. 127, IAEA, Wien (1965); deutsche Übersetzung, KFK-tr-199.
- (96) P. Matussek, W. Michaelis, C. Weitkamp und H. Woda, in *Safeguard Techniques II*, S. 113, IAEA, Wien (1970).
- (97) H.J. Specht, J.S. Fraser und J.C.D. Milton, *Phys. Rev. Lett.* 17, 1187 (1966).
- (98) D. Eccleshall und M.J.L. Yates, in *Physics and Chemistry of Fission*, S. 77, IAEA, Wien (1965).
- (99) J.J. Griffin, *Phys. Rev.* 132, 2204 (1963).
- (100) G.N. Smirenkin, V.G. Nesterov und A.S. Tishin, *Sov. J. Nucl. Phys.* 6, 671 (1968).

- (101) A. Bohr, B.R. Mottelson, und R.A. Pines, Phys. Rev. 110, 936 (1958).
- (102) J. Bardeen, L.N. Cooper und J.R. Schrieffer, Phys. Rev. 108, 1175 (1957).
- (103) H.C. Pauli, T. Ledergerber, Universität Basel; private Mitteilung.
- (104) A. Bohr und B.R. Mottelson, in Nucl. Structure, S. 263, Benjamin Inc. New York (1969).
- (105) J.M. Blatt und D. Thompson, Phys. Rev. Lett. 10, 332 (1963).
- (106) R.C. Kennedy, L. Wilets und E.M. Henley, Phys. Rev. Lett. 12, 36 (1964).

Herrn Prof. Dr. K.-H. Beckurts danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit und für die Möglichkeit, sie am Institut für Angewandte Kernphysik des Kernforschungszentrums Karlsruhe ausführen zu können.

Herrn Priv.-Doz. Dr. W. Gläser möchte ich für die gegebenen Anregungen und sein Interesse danken. Mein Dank gilt ferner Herrn Dr. Dickmann und Herr Prof. Dr. K. Dietrich für viele hilfreiche Diskussionen sowie Herrn Dr. F.H. Fröhner für seinen Beitrag zu dieser Arbeit. Herrn A. Ernst und Herrn D. Roller bin ich für ihre Hilfe bei der Datenerfassung bzw. bei der Herstellung der Radiatorproben zu Dank verpflichtet sowie Herrn J. Serman für die sorgfältig ausgeführten Zeichnungen. Insgesamt möchte ich mich bei der Betriebsgruppe des Van-de-Graaff-Beschleunigers für ihre freundliche Unterstützung bedanken.

