Zeitschrift: Helvetica Physica Acta
Band: 36 (1963)
Heft: III

Artikel: (n,t)-Reaktionen an mittelschweren Kernen
Autor: Heinrich, F. / Tanner, F.
DOI: https://doi.org/10.5169/seals-113374

Nutzungsbedingungen
Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Mehr erfahren

Conditions d'utilisation
L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. En savoir plus

Terms of use
The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. Find out more

Download PDF: 12.07.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

(n, t)-Reaktionen an mittelschweren Kernen

von **F. Heinrich** und **F. Tanner**
(Laboratorium für Kernphysik, ETH)

(10. X. 62)

Summary. Measurements have been made on the total cross-sections for the capture of fast neutrons, inducing tritonemission, in medium-weight nuclei. The method employed proves the absolute quantity of tritium, produced due to the irradiation. The (n, t)-cross-sections on Al, Cr, Mn, Fe, Co, Ni and Cu show a satisfactory agreement with the results of the statistical theory of nuclei. However, in the particular case of silver, the reaction probability is a factor of 40 larger than that expected from the conception of the compound nucleus, which can possibly be interpreted as a direct interaction.

Due to the large amount of tritium produced by the reaction Li^6 (n, α) H^3, a special method was developed to indicate traces of impurities of lithium in the target materials.

1. Einleitung

Die durch Neutroneneinfang induzierte Tritonemission aus Elementen schwerer als Stickstoff ist bisher noch nicht beobachtet worden. Einzig an den Kernen Li, Be, B und N liegen Messungen der (n, t)-Reaktionsquerschnitte vor[1–4]). Bei diesen leichten Kernen sind jedoch die Voraussetzungen für die Anwendbarkeit des statistischen Kernmodells so schlecht erfüllt, dass ein Vergleich der Messresultate mit den Ergebnissen dieser Theorie nicht durchgeführt werden kann.

Im Gegensatz zu den (n, t)-Prozessen sind die totalen Wirkungsquerschnitte der Reaktionen vom Typus $(n, 2n)$, (n, p) und (n, α) sehr eingehend untersucht worden[5]). Der Grund dafür liegt wohl darin, dass sich diese Querschnitte durch Messung der Restkernaktivität relativ leicht ermitteln lassen. Während man bei den $(n, 2n)$-Prozessen eine durchaus befriedigende Übereinstimmung mit den Resultaten der statistischen Kerntheorie feststellen konnte, sind bei den (n, p)- und (n, α)-Reaktionen Abweichungen bis zu Faktoren 10^4 gefunden worden. Dieses Verhalten kann man mit dem Auftreten von Direkt-Prozessen erklären, bei denen der Kern nicht als Ganzes angeregt wird, sondern nur wenige Nukleonen in Wechselwirkung mit dem einfallenden Neutron treten. Die Energiespektren der emittierten Teilchen unterscheiden sich bei diesen zwei Arten der Wechselwirkung dadurch, dass der Schwerpunkt der Verteilung im Falle des Direkt-Prozesses bei höheren Energien liegt, als bei der Emission aus einem Compoundzustand. Experimentell äussert sich das – besonders bei kleinen Anregungsenergien – in einer drastischen Vergrösserung des Reaktionsquerschnittes. Zudem zeigt es sich, dass die Emissionswahrscheinlichkeit für ein bestimmtes Partikel – zum Beispiel ein α-Teilchen – stark von der Art der Anregung abhängt. Diese Diskrepanz zeigt sich sehr ausgeprägt zum Beispiel beim Vergleich der totalen Wirkungsquerschnitte für die Reaktionen (γ, α) und $n, \alpha)$[28, 5]).

Dieses verschiedenartige Verhalten wirft die Frage auf, ob es möglich ist, die Häufigkeit der (n, t)-Reaktion an mittelschweren Kernen mit Hilfe der Bohr'schen Compoundkernvorstellung zu beschreiben, oder ob auch hier das Modell eines Direkt-Prozesses herangezogen werden muss.

2. Durchführung des Experimentes

Das Ziel dieser Arbeit ist die Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte der (n, t)-Reaktionen an mittelschweren Kernen mit Hilfe schneller Reaktorneutronen. Unter σ_{eff} verstehen wir den über das Spaltungs-Neutronenspektrum gemittelten (n, t)-Querschnitt

$$\sigma_{eff} = \int_0^\infty \sigma_{(n,t)}(E)\, S(E)\, dE\,. \tag{1}$$

$\sigma_{(n,t)}(E)$ ist der Wirkungsquerschnitt der zu untersuchenden (n, t)-Reaktion und $S(E)$ bedeutet das auf 1 normierte Spektrum der Fissionsneutronen von Uran^{235}. Zur Bestimmung von σ_{eff} ist die Methode der Restkernaktivierung unbrauchbar, weil sie keine Unterscheidung der (n, t)- von den gleichzeitig auftretenden (n, dn)- und $(n, p\,2\,n)$-Prozessen zulässt. Zudem existieren praktisch keine Elemente, für die – selbst bei chemischer Abtrennung des um eine Ladungseinheit niedrigeren Tochterelementes – eine saubere Unterscheidung des (n, t)-Produkts von den Restkernen der (n, p)- und (n, d)-Prozesse möglich ist. Auch würden Unsicherheiten im Zerfallsschema des gesuchten Tochterkernes unerwünschte Fehlerquellen eröffnen. Man ist somit darauf angewiesen, das erzeugte Tritium anhand seiner eigenen β-Aktivität nachzuweisen, wozu wegen der Kleinheit der Wirkungsquerschnitte im hier verwendeten Neutronen-Energiebereich eine sehr empfindliche «low-level» Zählapparatur verwendet werden muss.

Die grösste Schwierigkeit, die bei diesem Direktnachweis auftritt, liegt jedoch in der Forderung eines extrem hohen Reinheitsgrades für das Targetmaterial. So würde beispielsweise eine Beimischung von nur 10^{-7} % Lithium in einer Eisenprobe eine etwa doppelt so grosse Reaktionswahrscheinlichkeit vortäuschen. Jede Messung des (n, t)-Querschnittes erfordert deshalb eine sorgfältige Bestimmung des Li-Gehaltes der bestrahlten Substanz.

Nach der Aktivierung mit hochenergetischen Reaktorneutronen werden die zu untersuchenden Metalle in einer Wasserstoffatmosphäre erhitzt. Das durch die (n, t)-Reaktion gebildete Tritium wird durch Diffusionsaustausch aus der Probe befreit, gereinigt und in ein Geiger-Müller-Zählrohr gefördert. Aus der gemessenen Stosszahl erhält man nach Anbringung von Korrekturen für Nulleffekt, Ansprechwahrscheinlichkeit, Gasverluste und Verunreinigungen in der Probe den effektiven Wirkungsquerschnitt der (n, t)-Reaktion.

1. Bestrahlung

An die zu bestrahlenden Elemente müssen folgende vier Forderungen gestellt werden. Es sollen keine durch Neutronen induzierte Reaktionen auf einen radioaktiven, gasförmigen Restkern führen. Dadurch soll erreicht werden, dass selbst eine unzulängliche Reinigung des Tritium-Trägergasgemisches keine Verfälschung des Mess-

resultates bewirken kann. Aus dem gleichen Grunde sollen die Dampfdrucke der Targetmaterialien möglichst tief liegen und durch thermische Neutronen des Reaktors keine starken Störaktivitäten erzeugt werden. Um das bei der Bestrahlung produzierte Tritium quantitativ zu erfassen, sollen nur solche Elemente zugelassen werden, die keine stabilen Hydride bilden. Diese stark einschränkenden Bedingungen führten zur Wahl von Al, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu und Ag.

Tabelle I

Q-Werte für (n, t)-Reaktionen nach VAL. J. ASHBY und HENRY C. CATRON[6]).

Kern	Q (Mev)	Kern	Q (Mev)
Al^{27}	$-10{,}87 \pm 0{,}02$	Co^{59}	$-8{,}943 \pm 0{,}008$
Cr^{50}	$-12{,}65 \pm 0{,}02$	Ni^{58}	$-11{,}10 \pm 0{,}02$
Cr^{52}	$-13{,}067 \pm 0{,}006$	Ni^{60}	$-11{,}55 \pm 0{,}01$
Cr^{53}	$-9{,}971 \pm 0{,}006$	Ni^{61}	$-8{,}822 \pm 0{,}007$
Cr^{54}	$-12{,}391 \pm 0{,}008$	Ni^{62}	$-11{,}94 \pm 0{,}01$
Mn^{55}	$-9{,}286 \pm 0{,}006$	Ni^{64}	$-12{,}44 \pm 0{,}04$
Fe^{54}	$-12{,}44 \pm 0{,}03$	Cu^{63}	$-8{,}257 \pm 0{,}01$
Fe^{56}	$-11{,}916 \pm 0{,}008$	Cu^{65}	$-8{,}62 \pm 0{,}01$
Fe^{57}	$-9{,}338 \pm 0{,}008$	Ag^{107}	$-6{,}70 \pm 0{,}46$
Fe^{58}	$-12{,}091 \pm 0{,}008$	Ag^{109}	$-7{,}10 \pm 0{,}46$

Aus Tabelle I gehen die Q-Werte der (n, t)-Reaktionen an diesen Metallen hervor. Die Triton-Emission wird daher nur durch hochenergetische Fissions-Neutronen des Reaktors ausgelöst. Für U^{235} ist die Energieverteilung dieser schnellen Neutronen durch

$$S(E) = \sqrt{\frac{2}{e\,\pi}}\, e^{-E} \sinh \sqrt{2\,E} \tag{2}$$

gegeben. Dieses Spektrum ist von D. L. HILL[7]) und B. E. WATT[8]) im Energiebereich von 0,1 bis 18 Mev experimentell bestätigt worden.

Im Rahmen unserer Messungen wurde das Neutronenspektrum des Reaktors*) am Ort der zu bestrahlenden Probe durch die Bestimmung des Ausbeuteverhältnisses

$$\eta = \frac{\int \sigma_{(n,\,\alpha)}\, S(E)\, dE}{\int \sigma_{(n,\,2n)}\, S(E)\, dE} \tag{3}$$

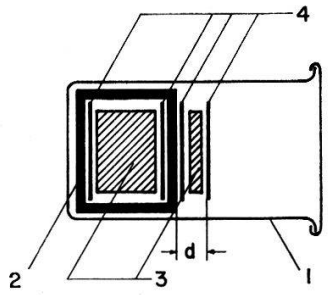
zweier Reaktionen mit stark verschiedenen Schwellenwerten kontrolliert. $\sigma_{(n,\,\alpha)}$ ist der Wirkungsquerschnitt für den (n, α)-Prozess an Al^{27} ($Q = -3{,}13$ Mev) und $\sigma_{(n,\,2n)}$ derjenige für die Reaktion $Ni^{58}(n, 2\,n)Ni^{57}$ ($Q = -11{,}93$ Mev). Die beiden Integrale in (3) ergeben sich aus Aktivitätsmessungen der bestrahlten Aluminium- bzw. Nickelfolien. Für die Beobachtung der 36-stündigen Ni^{57}-Halbwertszeit ist allerdings eine chemische Abtrennung des gleichzeitig gebildeten Kobalts notwendig. Die Trennung wurde mit Hilfe eines Anionenaustauschverfahrens an Nalcite-SBR[25, 26]) durchgeführt und das gereinigte Nickel durch elektrolytischen Niederschlag an einer Kupferplatte rekuperiert. Die bei jeder Bestrahlung wiederholte Bestimmung der Grösse η ergab Werte

*) Alle Bestrahlungen wurden mit dem swimming-pool-Reaktor «Saphir» des Eidg. Instituts für Reaktorforschungen in Wührenlingen durchgeführt.

zwischen 144 und 146. Anderseits lässt sich η wegen der bekannten Energieabhängigkeit der Querschnitte[9–13]) aus (2) und (3) berechnen mit dem Resultat

$$\eta_{ber.} = 144 \pm 20 .$$

Die gute Übereinstimmung der beiden Ergebnisse zeigt, dass das Fission-Spektrum durch das den Reaktorkern umgebende Wasser nicht wesentlich verändert wird, was auch zu erwarten war, weil die Proben nie weiter als 49 mm von den Brennstoffelementen entfernt angebracht wurden.



Figur 1
Bestrahlungsgeometrie: 1 Al-Büchse, 2 Cd-Büchse, 3 Präparate, 4 Monitoren.

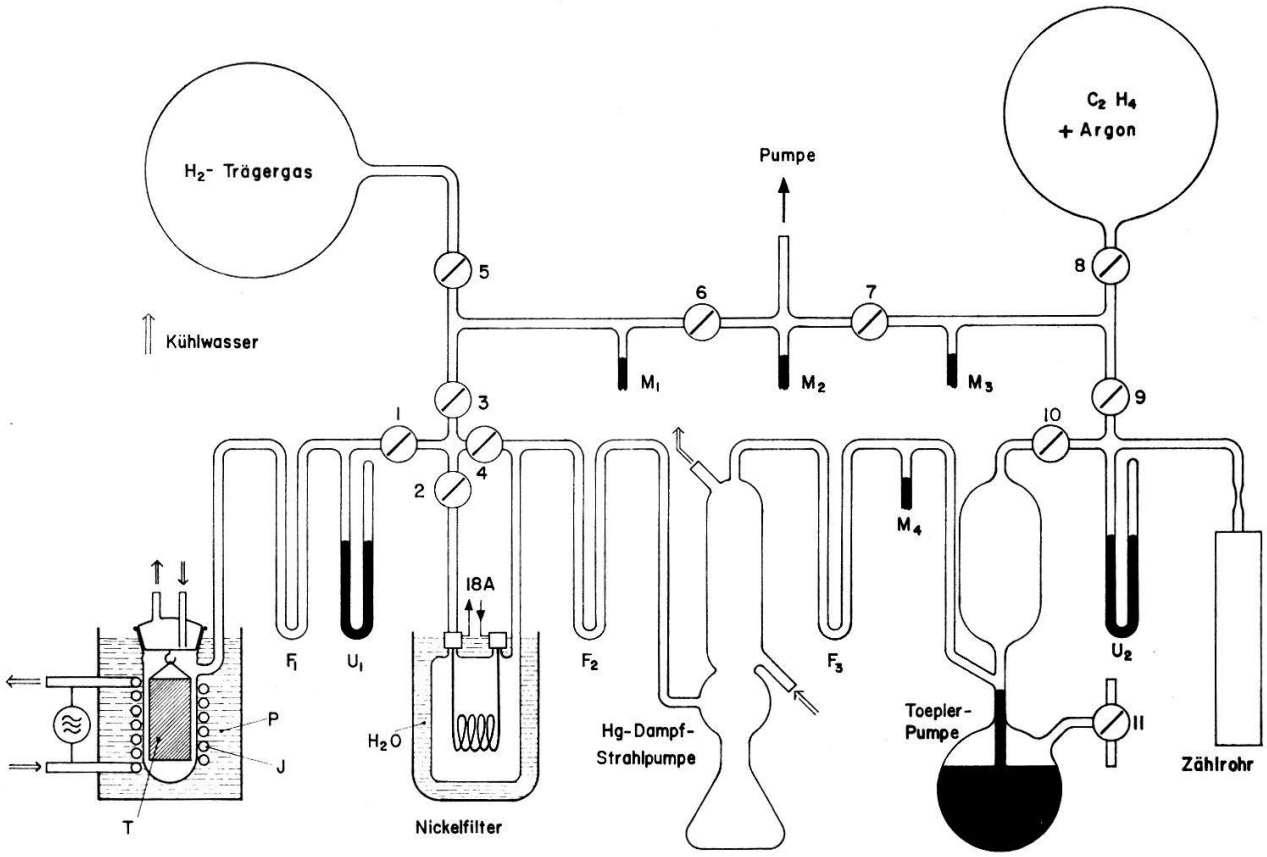
Fig. 1 zeigt die Bestrahlungsgeometrie. Das sorgfältig entgaste, meistens in Zylinderform vorliegende Material wird allseitig von einem 1 mm dicken Cadmium-Blech umgeben. Dadurch wird ein Beitrag eventueller Lithium- und Bor-Verunreinigungen zur gemessenen Tritiumaktivität stark reduziert. Die genaue Bestimmung des Li-Gehaltes (siehe 3.1) erfordert eine gleichzeitige Bestrahlung des Targetmaterials *ohne* Cadmiumabschirmung. Aus diesem Grund wird ein Teil des zu untersuchenden Metalles ausserhalb des Cd-Behälters befestigt. Bei dieser Anordnung wurde speziell auf guten Wärmekontakt zwischen Probe und Büchse geachtet, um eine Erhitzung der Substanz und dadurch bedingte H^3-Verluste zu vermeiden. Wie die Bestrahlung von Wood'schem Metall in gleicher Geometrie zeigte, beträgt die Erwärmung auch bei maximaler Reaktorleistung weniger als 50° C. Die Probe wird schliesslich in eine dünnwandige, wasserdicht verschliessbare Aluminiumbüchse eingepackt. Die Al- und Ni-Folien dienen als Monitoren, und zwar für die Ermittlung sowohl der absoluten Intensität der schnellen Neutronen, wie auch der Variationen des Flusses innerhalb der Aluminiumbüchse. Die Flussänderung der schnellen Neutronen im Innern der Proben ist klein. Sie beträgt im extremsten Falle 8% und wurde bei der Auswertung berücksichtigt. Wegen der Abnahme des (*n*, *t*)-Querschnittes beim Übergang zu schwereren Elementen wächst die Bestrahlungsdauer mit zunehmender Massenzahl rasch an. (1,5 h bei Al, 14 h bei Ag).

Wird das aktivierte Material ohne Zwischenbehandlung dem Extraktionsprozess unterworfen, so findet man bei Wiederholung der Versuche stark voneinander abweichende Resultate. Um reproduzierbare Wirkungsquerschnitte zu erhalten genügt es, eine Schicht von 50 mg/cm² mit geeigneten Säuren zu entfernen. Diese Behandlung ist notwendig wegen unvermeidlicher Verunreinigungen der Metalloberfläche durch leichte Elemente, von denen vor allem Lithium und Bor zu einer Erhöhung der gemessenen Aktivität beitragen. Anderseits wird während der Bestrahlung auch in der

das Metall umgebenden Luft durch den (n, t)-Prozess an N^{14} Tritium erzeugt, das zum Teil in die Probe eindringt. Die Reichweite der schnellsten Teilchen beträgt jedoch weniger als 50 mg/cm², so dass sich durch das Abtragen einer entsprechend dicken Oberflächenschicht beide Störeffekte eliminieren lassen.

2. *Extraktion des Tritiums*

Nach mehrmaligem Waschen mit destilliertem Wasser wird das abgeätzte Metall sorgfältig getrocknet und in einen entgasten, mit Quarz ausgekleideten Stahlzylinder gebracht. Dieser hängt in einer mit einem wassergekühlten Schliff verschlossenen Pyrexretorte. Zur Heizung des Tiegels auf 850–950° C dient ein 2 kW-Hochfrequenzgenerator, dessen wasserdurchströmte Arbeitsspule das Ausheizgefäss eng umschliesst. Der Wärmekontakt zwischen Spule und Pyrexwand wird durch in ständiger Bewegung gehaltenes Paraffinöl vermittelt.



Figur 2

Glasapparatur. *T* Stahltiegel mit Quarzeinsatz und Probe; *P* Paraffinöl; *J* Arbeitsspule des Induktionssenders; *F* Kühlfallen (flüssige Luft); *U* Hg-U-Manometer; *M* Lange Hg-Manometer.

Die ganze Glasapparatur wird evakuiert und die Retorte (Figur 2) mit etwa $4 \cdot 10^{-5}$ Mol Wasserstoff gefüllt. Dieser übernimmt die Rolle des Trägergases, indem er sich während des zweistündigen Ausheizvorganges dauernd mit dem aus der Probe herausdiffundierenden Tritium vermischt. Die Temperatur des Ölbades wird ständig verfolgt und die Konstanz des Druckes in der Retorte kontrolliert, um einen eventuellen Gasausbruch aus der Probe feststellen zu können. Die mit flüssiger Luft gekühlten U-Rohre dienen zum Ausfrieren kondensierbarer Dämpfe. Das so erhaltene H_2–HT-Gemisch wird zur weiteren Reinigung durch ein Nickelfilter geleitet, mit

einer Quecksilberdampfstrahlpumpe in eine Toeplerpumpe gefördert und mit dieser in das angeschlossene Zählrohr gedrückt.

Das Reinigungsfilter besteht aus einem einseitig verschlossenen, spiralförmig gebogenem Nickelrohr von 1 m Länge, 2,4 mm Durchmesser und 0,2 mm Wandstärke. Das Nickelrohr wird durch direkten Stromdurchgang auf etwa 750° C geheizt, wobei es für Wasserstoff durchlässig wird, während Fremdgase zurückgehalten werden[14]). Am Element Aluminium wurden die Messresultate mit, bzw. ohne Reinigung des H_2–HT-Gemisches im Nickelfilter miteinander verglichen und für gleich befunden. Damit wurde nicht nur gezeigt, dass in diesem Fall keine radioaktiven Fremdgase auftreten, sondern auch demonstriert, dass allfällige Isotopentrenneffekte beim Passieren des Filters ausgeschlossen werden dürfen.

Für eine vollständige Befreiung des Tritiums aus der Probe muss der Extraktionsprozess mehrmals wiederholt werden. Das Verhältnis der beim ersten «Run» erhaltenen zur totalen Tritiummenge lag bei allen untersuchten Metallen zwischen 81% und 95%, so dass mit dreimaligem Ausheizen – jeweils nach Zugabe von neuem Trägergas – das Tritium quantitativ aus der Probe befreit wird.

Gasverluste beim Transport des H_2–HT-Gemisches vom Heizraum ins Zählrohr lassen sich aus den bekannten Totvolumina der Glasapparatur mittels Druckmessungen quantitativ ermitteln und werden in (4) durch den Korrekturfaktor $k_g = 0{,}806 \pm 0{,}008$ berücksichtigt.

3. Absolutmessung der Tritiumaktivität

Die Aktivitätsmessungen wurden mit Geiger-Müller-Zählröhren vorgenommen. Als Kathodenmaterial wurden speziell ausgesuchte Kupferrohre von 25 mm Innendurchmesser gewählt, die sich als weitgehend frei von radioaktiven Verunreinigungen erwiesen. Der 177 mm lange Anodendraht von 0,15 mm Durchmesser besteht aus rostfreiem Stahl und wird durch Quarzstücke von der Kathode isoliert. Von allen untersuchten Isolatoren genügt Quarz den Anforderungen geringer radioaktiver Kontamination bei guten Isolatoreigenschaften am besten.

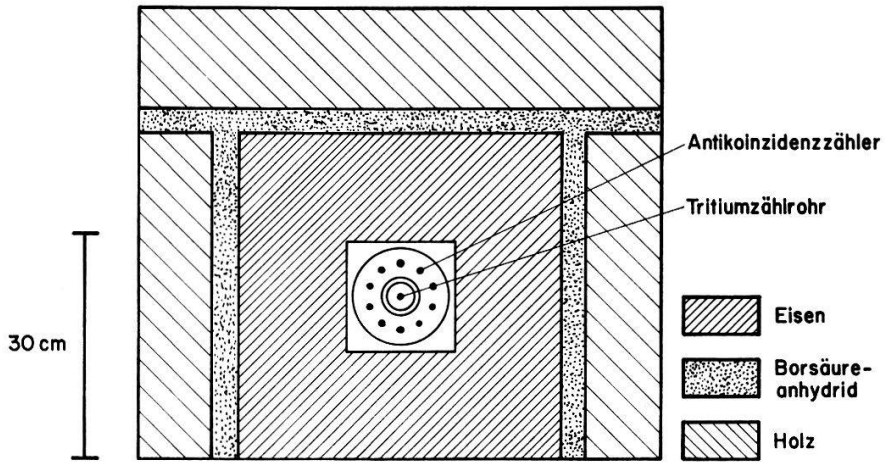
Als Zählgas dient nach einem Vorschlag von W. F. LIBBY und R. L. WOLFGANG[15]) ein Gemisch aus 3 Teilen Argon und 1 Teil Aethylen. Letzteres wurde durch 15malige fraktionierte Kondensation gereinigt. Beim Betrieb des Zählers, der etwa 10% Wasserstoff enthält, werden bei Entladungen H^--Ionen gebildet, die eine Lawine auslösen können, nachdem der Elektronenpuls bereits abgeklungen ist. Aethylen hat die Eigenschaft, seine Doppelbindung zu lösen und H^--Ionen unter Bildung des Radikals $C_2H_5^-$ anzulagern. («chemical quenching»).

Fig. 3 zeigt die Abschirmung des Tritiumzählers.

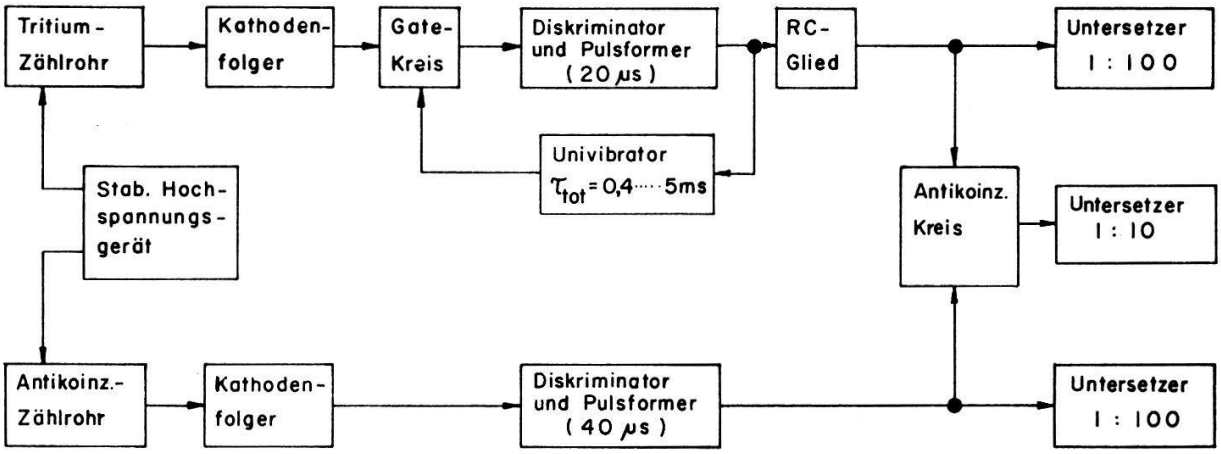
Zur Elimination des durch μ-Mesonen erzeugten Untergrundes wird der Tritium-Detektor von einem etwa dreimal längeren Antikoinzidenzzähler umgeben, der aus einer ringförmigen Anordnung von 10 parallelen Drähten zwischen zwei konzentrischen Rohren besteht. Eine 15 cm dicke Eisenschicht dient zur Reduktion der Umgebungsaktivität sowie der weichen Komponente der kosmischen Strahlung. Zum Schutze gegen Neutronen wird eine zusätzliche Abschirmung aus Holz und Borsäure verwendet.

Figur 4 zeigt das Blockdiagramm der elektronischen Antikoinzidenzapparatur, die als einzige Besonderheit eine künstliche, von 0,4 bis 5 ms variable Totzeit τ_{tot} im

Tritiumkanal aufweist. Diese relativ lange Totzeit bewirkt, dass Nachentladungen von nicht neutralisierten negativen Wasserstoffionen, die den Elektronenpulsen mit einer Verzögerung von der Grössenordnung der Ionendriftzeit folgen eliminiert werden. Dadurch wird erreicht, dass die verwendeten Tritiumzählrohre sogar bei einem Wasserstoffpartialdruck von 10 mm Hg noch Plateaus von 200 Volt Länge bei einer Steilheit von etwa 5%/100 Volt zeigen.



Figur 3
Abschirmung



Figur 4
Elektronische Zählapparatur.

Der Untergrund der Gesamtanordnung der einzelnen Zählrohre liegt zwischen 0,8 und 1,4 Stössen/Minute. Für einen bestimmten Zähler dagegen ist die Untergrundzählrate von Füllung zu Füllung innerhalb $\pm$ 10% reproduzierbar. Der Restuntergrund rührt hauptsächlich von radioaktiven Verunreinigungen des Zählrohrmaterials her. Bei diesem Nulleffekt können etwa $5 \cdot 10^6$ Tritiumkerne noch quantitativ nachgewiesen werden.

Für die Bestimmung der absoluten Tritium-Disintegrationsrate aus der gemessenen Stosszahl müssen die Korrekturfaktoren für Volumen-, Wand- und Endverluste des Zählers bekannt sein. Ersterer ergibt sich aus der Geometrie des Zählers zu $k_v = 0{,}921 \pm 0{,}005$.

Die Endverluste werden nach der von A. G. ENGELKEMEIER und W. F. LIBBY[16]) angegebenen Formel

$$k_e = 1 - \frac{B\,D}{L} = 0{,}960 \pm 0{,}003$$

berechnet. Diese Beziehung beruht auf der Annahme einer Proportionalität zwischen dem Durchmesser D und der «unempfindlichen» Drahtlänge. Die Proportionalitätskonstante B ist eine Funktion der β-Energie und wurde von den Autoren experimentell ermittelt. Für Tritium ist $B = 0{,}28$. Die an den Zählrohrwänden auftretenden Verluste durch Nichtionisation werden durch Sekundäremission an den Kathodenwänden gerade kompensiert. Damit ist die absolute Zerfallsrate Z_T der totalen, nach der Bestrahlung in der Probe vorhandenen Tritiummenge

$$Z_{\mathrm{T}} = \frac{S}{k_g\, k_v\, k_e}, \tag{4}$$

wobei S die im Tritium Detektor gemessene Stossrate nach Subtraktion des Untergrundes und k_g der in 2.2 erwähnte Korrekturfaktor für Gasverluste in der Glasapparatur ist.

3. Störreaktionen

Nach (4) bedeutet Z_{T} die Zerfallsrate der totalen, während der Bestrahlung in der durch Cd abgeschirmten Probe akkumulierten Tritiummenge. Es enthält somit auch die Zerfälle jener Tritionen, die durch (n, t)-Prozesse an *Verunreinigungen* erzeugt wurden. Darunter sind wegen der exothermen Q-Werte der Reaktionen $\mathrm{Li}^6(n, t)\mathrm{He}^4$ und $\mathrm{B}^{10}(n, t)\mathrm{Be}^8$ besonders Lithium und Bor zu berücksichtigen. Z_{T} setzt sich somit aus den Anteilen

$$Z_{\mathrm{T}} = Z_x + Z_{\mathrm{Li}}^{epi} + Z_{\mathrm{Li}}^{fission} + Z_{\mathrm{B}} + Z_{Rest}$$

zusammen. Z_x ist die Zerfallsrate der Tritiummenge, gebildet durch die zu untersuchende (n, t)-Reaktion. Z_{Li}^{epi} und $Z_{\mathrm{Li}}^{fission}$ sind die Beiträge von Li^6, induziert durch epithermische bzw. schnelle Neutronen; Z_{B} ist der von B^{10} herrührende Anteil, Z_{Rest} derjenige aller übrigen Verunreinigungen. Zur Bestimmung obiger Grössen muss die prozentuale Beimischung aller Störelemente bekannt sein. Auf Grund der von der Lieferfirma angegebenen Reinheitsgrade für die Targetmaterialien kann gezeigt werden, dass Z_{Rest} stets vernachlässigt werden darf. Lithium und Bor konnten spektralanalytisch in keinem der verwendeten Metalle gefunden werden. Unter der Annahme eines maximalen Bor-Gehaltes von $10^{-5}\%$, was etwa der Nachweisgrenze optischer Methoden entspricht, wird auch der Beitrag Z_{B} vernachlässigbar klein. Z_{T} reduziert sich dadurch zu

$$Z_{\mathrm{T}} = Z_x + Z_{\mathrm{Li}}^{epi} + Z_{\mathrm{Li}}^{fission}. \tag{5}$$

1. Einfluss von Li^6-Verunreinigungen auf das Messresultat

Im folgenden soll gezeigt werden, dass selbst durch spektroskopische Methoden nicht nachweisbare Lithiumkontaminationen zu groben Verfälschungen der Messresultate führen können, dass es aber dank der $1/v$-Abhängigkeit[17]) des Wirkungs-

querschnittes der Reaktion Li^6 (n, t) He^4 im thermischen und epithermischen Gebiet gelingt, durch Messung des Kadmiumverhältnisses

$$R_{1/v} = \frac{Z_{\mathrm{Li}}^{epi} + Z_{\mathrm{Li}}^{th}}{Z_{\mathrm{Li}}^{epi}}$$

den Lithiumbeitrag zur Disintegrationsrate zu bestimmen. Dazu muss das zu untersuchende Metall auch *ohne* Kadmiumabschirmung bestrahlt werden (vgl. 2.1 und Figur 1). In diesem Fall ist daher

$$Z'_{\mathrm{T}} = Z_x + Z_{\mathrm{Li}}^{fission} + Z_{\mathrm{Li}}^{th} + Z_{\mathrm{Li}}^{epi}\,. \tag{6}$$

Aus der Differenz $Z'_{\mathrm{T}} - Z_{\mathrm{T}}$ lässt sich nun – sofern der Fluss ϕ_S der Fissionneutronen und der thermische Fluss ϕ_{th} bekannt sind – der Lithiumbeitrag in (5) eliminieren. Und zwar ist:

$$Z_{\mathrm{Li}}^{epi} = \frac{Z'_{\mathrm{T}} - Z_{\mathrm{T}}}{(R_{1/v} - 1)}\,, \qquad Z_{\mathrm{Li}}^{fission} = (Z'_{\mathrm{T}} - Z_{\mathrm{T}})\,\frac{\phi_S \int \sigma_{(n,t)}^{\mathrm{Li}}(E)\, S(E)\, dE}{\phi_{th}\, \sigma_0^{\mathrm{Li}}}\,, \tag{7}$$

wobei $\sigma_0^{\mathrm{Li}} = 950$ barn der Wirkungsquerschnitt für die (n, t)-Reaktion an Li^6 bei 2200 m/sec ist. Damit ist die gesuchte Tritiumzerfallsrate Z_x durch

$$Z_x = Z_{\mathrm{T}}\,(1 - w)\,; \qquad w = \frac{Z_{\mathrm{Li}}^{epi} + Z_{\mathrm{Li}}^{fission}}{Z_{\mathrm{T}}} \tag{8}$$

gegeben.

Aus der Tritiumzerfallsrate $Z'_{\mathrm{T}} - Z_{\mathrm{T}}$ lässt sich auch die absolute Zahl der Li^6-Kerne in der Probe

$$N_0^{\mathrm{Li}^6} = \frac{Z'_{\mathrm{T}} - Z_{\mathrm{T}}}{\lambda\, \sigma_0^{\mathrm{Li}}\, \phi_{th}\, \tau} \tag{9}$$

berechnen. τ bedeutet die Bestrahlungsdauer und $\lambda = 0{,}0566$ Jahre^{-1} die Zerfallskonstante des Tritiums. Im folgenden wird es sich zeigen, dass der Li-Gehalt der untersuchten Metalle zwischen 10^{-6}% und 10^{-8}% variiert (Tabelle III). Die beschriebene Methode liefert somit die Möglichkeit zur Bestimmung extrem kleiner Li-Verunreinigungen. Die Erfassungsgrenze dieses Verfahrens liegt um mehrere Zehnerpotenzen unterhalb der Nachweisgrenze der bekannten chemischen und spektroskopischen Analyseverfahren, so dass diese spezifische Mikromethode auch auf anderen Gebieten Verwendung finden könnte.

2. *Bestimmung des Cadmium-Verhältnisses*

Das Cadmiumverhältnis

$$R = \frac{\text{Aktivität ohne Cd-Abschirmung}}{\text{Aktivität mit Cd-Abschirmung}}$$

ist unabhängig von der Wahl der Substanz, sofern der für die erzeugte Aktivität verantwortliche Wirkungsquerschnitt dem $1/v$-Gesetz gehorcht, was im folgenden durch den Index $1/v$ angedeutet wird. Es ist somit eine für den Reaktor charakteristische, nur vom Bestrahlungsort abhängige Grösse, zu deren Bestimmung lediglich eine Bestrahlung von Lithium erforderlich ist, wobei sich ein Teil der Probe im Innern der Cd-Büchse und der Rest ausserhalb derselben befinden muss. Aus den Zerfallsraten der abgetrennten Tritiummengen lässt sich dann das gesuchte Cd-Verhältnis

berechnen. Wegen der starken chemischen Reaktionsfähigkeit des metallischen Lithiums wurde eine vom Institut für Reaktorforschung hergestellte, 7,2% Lithium enthaltende Aluminiumlegierung verwendet. Die Bestrahlungsgeometrie muss genau die gleiche sein wie bei der Bestimmung der (n, t)-Querschnitte, damit der Einfluss der Cd-Büchse auf die Aktivität der unabgeschirmten Probe unverändert bleibt. Die erforderliche Tritiumextraktion bewirkt, dass diese direkte Messmethode sehr viel Zeit beansprucht, was besonders dann ins Gewicht fällt, wenn das Cd-Verhältnis an vielen Orten im Reaktor ermittelt werden muss. Sie wurde deshalb nur dazu benützt, um das folgende, experimentell einfachere indirekte Verfahren zu kontrollieren. Bei dieser zweiten Methode wird zuerst das Cd-Verhältnis R für Gold gemessen und daraus der entsprechende Wert für einen $1/v$-Detektor berechnet. Gold wurde gewählt, weil der Wirkungsquerschnitt der Reaktion Au^{197} (n, γ) Au^{198} im thermischen Gebiet einen $1/v$-Verlauf zeigt und bei 4,9 ev eine ausgeprägte Resonanz aufweist. Ausserdem besitzt Au^{198} eine für Restkernaktivitätsmessungen bequeme Halbwertszeit von 2,7 Tagen. Die $1/v$-Abhängigkeit des (n, γ)-Querschnittes bewirkt, dass der nicht sehr genau bekannte Verlauf des Neutronenspektrums im Bereich von 4–10 kT keine nennenswerte Fehler bei der Berechnung von $R_{1/v}$ aus R verursacht.

Tabelle II

Das Cd-Verhältnis eines $1/v$-Detektors.

Bestrahlungsort	$R_{1/v}$ (d = 8,5 mm)
15	76,1 ± 1,5
16	55,6 ± 1
17	80,7 ± 1,6
18	55,5 ± 1
19	84,2 ± 2
20	54,0 ± 1
21	75,6 ± 1,5

Bei dieser Auswertung ist zu beachten, dass das Cd-Verhältnis für Gold von der Dicke δ der bestrahlten Folien abhängt. Und zwar nimmt R mit wachsendem δ zu, weil die Resonanzneutronen stärker absorbiert werden als die thermischen. Erst bei Folien mit Flächendichten unterhalb von 0,2 mg/cm² verschwindet diese Dickenabhängigkeit wegen der vernachlässigbar kleinen Abschwächung der Neutronenintensität. Das Cd-Verhältnis für Gold wurde vom Eidg. Inst. für Reaktorforschung in Würenlingen bis zu diesen extrem dünnen Schichten gemessen. Aus dem so bestimmten funktionalen Zusammenhang zwischen Foliendicke und Cd-Verhältnis lässt sich der bei den vorliegenden Messungen verwendete Wert R (für Goldscheiben von 38 mg/cm²) nach der Extrapolationsformel

$$R_0 = 0{,}41\ R + 0{,}59 \tag{10}$$

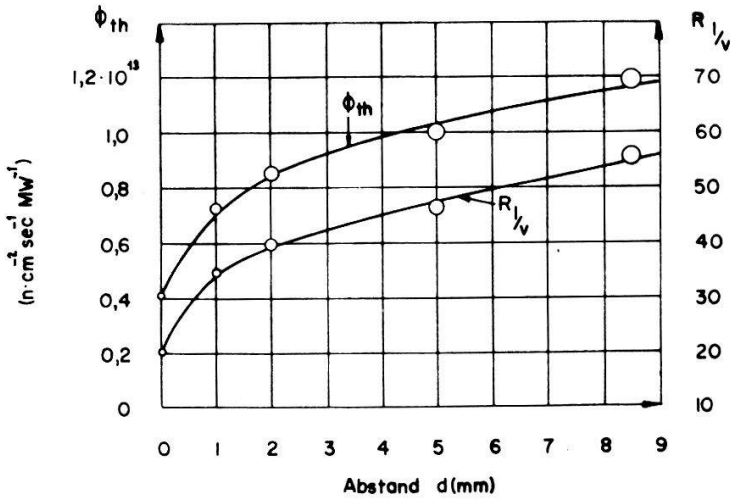
auf den Wert R_0 bei Foliendicke Null reduzieren. Um aus R_0 den gesuchten $1/v$-Beitrag zum Kadmiumverhältnis zu berechnen, wurde das von C. H. WESTCOTT[18][19]) vorgeschlagene Verfahren benutzt, wonach

$$R_{1/v} = \frac{R_0\,(1 + K\,s) - K\,s}{g}. \tag{11}$$

K, g und s sind tabellierte Funktionen, die von der Dicke der Kadmiumabschirmung, der Reaktortemperatur, dem Neutronenspektrum und dem Wirkungsquerschnitt der Monitorreaktion abhängen. In Tabelle II sind die an verschiedenen Stellen der Reaktoroberfläche gemessenen und gemäss (10) und (11) ausgewerteten Cd-Verhältnisse angegeben.

Die Proben bei Nr. 20 und Nr. 21 wurden simultan bestrahlt, um festzustellen, wie sich $R_{1/v}$ verhält, wenn auch im Nachbarkanal ein abgeschirmtes Präparat vorhanden ist. An der Bestrahlungsstelle Nr. 18 wurde das Cd-Verhältnis auch mit Hilfe der direkten Messung an der genannten Li-Al-Legierung bestimmt mit dem Ergebnis $R_{1/v} = 56 \pm 6$. Die gute Übereinstimmung mit dem aus der Goldaktivität erhaltenen Resultat ist ein Beweis für die Brauchbarkeit des obigen Rechenverfahrens.

Sämtliche Werte in Tabelle II gelten für einen Abstand $d = 8{,}5$ mm zwischen Büchsendeckel und unabgeschirmter Goldfolie (vgl. Figur 1). Für andere Werte von d ändert sich sowohl $R_{1/v}$ als auch die Intensität der thermischen Neutronen, weil durch die Cd-Büchse selbst eine Flussdepression in der Umgebung erzeugt wird. Figur 5 zeigt die am Bestrahlungsort Nr. 18 gemessene Abstandsabhängigkeit von $R_{1/v}$ und ϕ_{th} (vgl. auch IV).



Figur 5

Thermischer Neutronenfluss und Cd-Verhältnis in Abhängigkeit vom Abstand d am Bestrahlungsort Nr. 18. Die Bedeutung von d geht aus Figur 1 hervor. Die Messfehler korrespondieren mit den Punktdurchmessern.

Da d – besonders bei voluminösen Proben – in weiten Grenzen variiert, muss man die über die ganze Ausdehnung der Probe gemittelten Quantitäten $\overline{R_{1/v}}$ und $\overline{\phi_{th}}$ bestimmen. Mit diesen Mittelwerten lassen sich nun unter Zuhilfenahme von (7), (8) und (9) die Li-Gehalte bzw. Li-Korrekturwerte w, die in Tabelle III zusammengestellt sind, für jedes der untersuchten Elemente berechnen.

Die angegebenen Fehler rühren hauptsächlich von den mit 5–8% Unsicherheit behafteten thermischen Neutronendichten her. Bei Silber vergrössert sich der Fehler wegen der nur näherungsweise berechenbaren Abschwächung der Neutronenintensität im Innern der Probe. Die Werte für w in Tabelle III sind allerdings nur repräsentativ, weil die genauen Zahlen, die für jede Bestrahlung separat ermittelt werden müssen,

vom Bestrahlungsort abhängen. Nähert sich w dem Wert 1, so zeigt das eine starke Li-Verunreinigung an. In diesem Fall ist Z_x in (8) die Differenz zweier fast gleich grosser Zahlen, was zu beträchtlichen Fehlern Anlass gibt. Damit die Unsicherheit des aus Z_x berechneten (n, t)-Reaktionsquerschnittes weniger als 20% beträgt, muss w kleiner als 0,65 sein. Wie Tabelle III zeigt, ist diese Bedingung bei Eisen, Kobalt und Nickel nicht erfüllt, so dass für obige drei Elemente keine genauen Resultate zu erwarten sind.

Tabelle III
Li-Gehalt und Li-Korrekturfaktor w

Element	Li-Gehalt in %	w
Al	$(2{,}0 \pm 0{,}3) \cdot 10^{-8}$	0,007
Cr	$(2{,}8 \pm 0{,}2) \cdot 10^{-8}$	0,10
Mn	$(3{,}5 \pm 0{,}3) \cdot 10^{-7}$	0,30
Fe	$(3{,}6 \pm 0{,}3) \cdot 10^{-7}$	0,65
Co	$(1{,}90 \pm 0{,}15) \cdot 10^{-6}$	0,88
Ni	$(3{,}8 \pm 0{,}3) \cdot 10^{-6}$	0,98
Cu	$(1{,}25 \pm 0{,}15) \cdot 10^{-8}$	0,05
Ag	$(0{,}67 \pm 0{,}12) \cdot 10^{-8}$	0,10

4. Bestimmung des Neutronenflusses

1. *Thermische Neutronen*

Der Fluss der thermischen Neutronen lässt sich aus der Aktivität der bestrahlten Goldfolien bestimmen. Für sämtliche Monitormessungen wurde ein Stirnzählrohr mit einer Fensterdicke von 2,9 mg/cm² verwendet, dessen Absoluteichung mit Hilfe eines Uranpräparates erfolgte. Bedeutet S_a die pro Zeiteinheit gemessene Stosszahl der nicht mit Cadmium abgeschirmten Au-Folie nach einer Bestrahlung der Dauer τ, so ergibt sich der Fluss der thermischen Neutronen zu

$$\phi_{th} = \frac{S_a\,((R-1)/R)}{N_0^{\mathrm{Au}}\,\sigma_0^{\mathrm{Au}}\,(1-e^{-\lambda^{\mathrm{Au}}\tau})\,C}\,. \tag{12}$$

$\sigma_0^{\mathrm{Au}} = 98{,}8$ barn ist der Wirkungsquerschnitt der (n, γ)-Reaktion an Gold für thermische Neutronen und λ^{Au} die Zerfallskonstante des erzeugten Isotopes Au^{198}. R gibt das Cd-Verhältnis für Goldfolien von 38 mg/cm² und N_0^{Au} die Zahl der in der Folie enthaltenen Au^{197}-Kerne an. Die Konstante $C = 0{,}201$ fasst sämtliche bei der Zählrohrmessung auftretenden Korrekturen zusammen. Sie enthält die Ansprechwahrscheinlichkeit und den Raumwinkel des Zählers sowie Korrekturen für die Selbstabsorption und Rückstreuung der β-Teilchen im Präparat. Die explizite Kenntnis der epithermischen Neutronendichte ist zur Bestimmung der (n, t)-Querschnitte nicht erforderlich, kann jedoch aus den bereits gemessenen Grössen leicht ermittelt werden.

Die in Tabelle IV angegebenen Flüsse gelten für eine Reaktorleistung von 1 MW. Die Werte für ϕ_{th} sind im Abstand $d = 8{,}5$ mm gemessen worden.

2. *Schnelle Neutronen*

Zur Bestimmung des Flusses ϕ_s der Fission-Neutronen dienen die mitbestrahlten Aluminium- und Nickelfolien. Wie unter 2 begründet, werden zwei verschiedene Monitoren verwendet, um gleichzeitig den Verlauf des Spektrums kontrollieren zu können. Aus der gemessenen Aktivität A^* des Monitors lässt sich ϕ_s nach

$$\phi_s = \frac{4\,\pi\,A^*}{\Omega\,\varepsilon\,\beta\,\varrho\,\varphi\,N_0^*\,(1-e^{-\lambda^*\tau})\int\sigma^*(E)\,S(E)\,dE}\,, \tag{13}$$

$\sigma^*(E)$: Wirkungsquerschnitt der Reaktion Al^{27} (n, α) Na^{24} bzw. Ni^{58} $(n, 2n)$ Ni^{57}
λ^*: Zerfallskonstante von Na^{24} bzw. Ni^{57}
$S(E)$: Fission-Spektrum (2)
τ: Dauer der Bestrahlung
N_0^*: Zahl der Al^{27}- bzw. Ni^{58}-Kerne
β: Anteil der registrierbaren Strahlung
ε: Ansprechwahrscheinlichkeit des β-Zählers
Ω: Raumwinkel
φ: Korrektur bezüglich Absorption und Rückstreuung der β-Teilchen im Präparat
ϱ: Korrektur für die Rückstreuung im Präparathalter

berechnen. φ und ϱ sind Funktionen der Präparatdicke und wurden experimentell bestimmt. Die entsprechenden Flusswerte gehen aus Tabelle IV hervor.

Tabelle IV

Fluss der thermischen und schnellen Reaktorneutronen bei einer Reaktorleistung von 1 MW.

Bestrahlungsort	ϕ_{th} $cm^{-2}\,sec^{-1}$	ϕ_s $cm^{-2}\,sec^{-1}$
15	$0{,}78 \cdot 10^{13}$	$0{,}33 \cdot 10^{13}$
16	1,12	0,39
17	0,73	0,23
18	1,20	0,42
19	1,01	0,28
20	1,14	0,44
21	0,84	0,26
Fehler	$\pm$ 5%	$\pm$ 15%

5. Auswertung der Messresultate

Wegen der Benützung des Reaktors als Neutronenquelle lässt sich experimentell nur der in 2 definierte effektive Wirkungsquerschnitt (1) bestimmen. Der in der Einleitung erwähnte Vergleich mit den Ergebnissen der statistischen Kerntheorie lässt sich aber trotzdem durchführen. Er erfordert lediglich einen grösseren Rechenaufwand, weil die theoretischen σ-Werte nicht nur für eine bestimmte Energie, sondern für das ganze Spektrum berechnet werden müssen. Aus der im Tritiumzählrohr gemessenen Stossrate S erhält man unter Benutzung von (4) und (8) die Disintegrations-

rate Z_x des durch die zu untersuchende (n, t)-Reaktion gebildeten Tritiums. Anderseits ist Z_x mit dem gesuchten (n, t)-Querschnitt durch die Beziehung

$$Z_x = N_0 \lambda \tau \phi_s \sigma_{eff} \tag{14}$$

verknüpft. λ ist die Zerfallskonstante des Tritiums, N_0 gibt die Zahl der Targetkerne an. Setzt man den in IV.2 berechneten Fluss ϕ_s der schnellen Neutronen in (14) ein, so folgt für den effektiven Wirkungsquerschnitt

$$\sigma_{eff} = \frac{Z_x N_0^* (1 - e^{-\lambda^* \tau})}{Z^* N_0 \lambda \tau} V \int \sigma^*(E) S(E) dE , \tag{15}$$

wobei

$$Z^* = \frac{4 \pi A^*}{\Omega \varepsilon \beta \varrho \varphi} .$$

V ist eine Korrekturgrösse, die nur dann von 1 verschieden ist, wenn die mittlere Neutronenintensität im Innern der Probe nicht identisch ist mit derjenigen am Ort des Monitors. Aus der bekannten Energieabhängigkeit der Monitorenreaktionen berechnet sich das Integral in (15) zu

$$\int \sigma^*(E) S(E) dE = \begin{cases} (6{,}84 \pm 1) \cdot 10^{-28} \text{ cm}^2 , & \text{für Al-Monitor} , \\ (4{,}74 \pm 0{,}7) \cdot 10^{-30} \text{ cm}^2 , & \text{für Ni-Monitor} . \end{cases} \tag{16}$$

Die Unsicherheit von $\pm$ 15% in (16) rührt von der ungenauen Kenntnis der $\sigma^*(E)$ her und geht voll in die effektiven Wirkungsquerschnitte der (n, t)-Reaktionen ein. Bildet man hingegen den Quotienten zweier (n, t)-Querschnitte, so entfällt diese Fehlerquelle, so dass diese relative Grösse nur noch mit einem Fehler von etwa 5% behaftet ist, sofern man die Elemente mit grossen Li-Verunreinigungen (Fe, Ni, Co) ausser Betracht lässt. Um abzuklären, ob und wieviel Tritium bereits bei Zimmertemperatur durch Kaltdiffusion aus dem Metall entweicht, wurde die bestrahlte Probe einmal unmittelbar nach der Aktivierung und in einem zweiten Versuch erst 1–3 Wochen später ausgewertet. Beide «Runs» lieferten übereinstimmende Werte für die aus den extrahierten Tritiummengen nach (15) berechneten effektiven Querschnitte. Dies war auch zu erwarten auf Grund analoger Messungen von F. HEINRICH[20]) an wesentlich dünneren Präparaten.

6. Vergleich der experimentellen Resultate mit den Ergebnissen der statistischen Kerntheorie

Auf Grund der Bohr'schen Compoundkernvorstellung lässt sich der Reaktionsquerschnitt $\sigma(\alpha, \beta)$ als Produkt aus dem Bildungsquerschnitt $\sigma_c(\alpha)$ für den Zwischenkern durch den Kanal α und der Wahrscheinlichkeit $\Gamma_\beta / \Sigma \Gamma_\gamma$ für den Zerfall des Compoundzustandes durch den Kanal β darstellen.

$$\sigma(\alpha, \beta) = \sigma_c(\alpha) \frac{\Gamma_\beta}{\sum_\gamma \Gamma_\gamma} . \tag{17}$$

Die Weisskopf'sche Beziehung[21])

$$\Gamma_\gamma = \frac{1}{U(E_c)} \frac{\sigma_c(\gamma)}{\lambda_\gamma^2} ,$$

die aus dem Reziprozitätstheorem hergeleitet werden kann, gibt den Zusammenhang zwischen der Niveaubreite Γ_γ und dem inversen Einfangsquerschnitt $\sigma_c(\gamma)$. Es ist zu beachten, dass die Funktion $U(E_c)$ einzig von der Anregungsenergie des Zwischenzustandes, dagegen nicht vom Kanal γ abhängt. Die Niveaubreite Γ_t für die Tritonemission

$$\Gamma_t = \frac{1}{U(E_c)} \sum_\tau \frac{\sigma_c(\tau)}{\lambda_\tau^2} \tag{18}$$

ergibt sich durch Summation über alle Kanäle, die zur Emission eines Tritons führen. Wenn die kinetische Energie E des einfallenden Neutrons so gross ist, dass die Tritonemission aus dem Zwischenkern viele und hochenergetische Zustände des Restkerns anregt, kann die Summe in (18) mit Hilfe der Verteilungsfunktion für die Niveaudichte ω durch ein Integral ersetzt werden. Bei Vernachlässigung der Rückstossenergie des Restkerns und unter Berücksichtigung der Spin-Multiplizität ist dann

$$\Gamma_t = \frac{2\,M_t}{U(E_c)\,\hbar^2} \left(\frac{2\,S_t + 1}{2}\right) \int_0^{E+Q_t} \varepsilon\,\sigma_c^t(\varepsilon)\,\omega\,(E + Q_t - \varepsilon)\,d\varepsilon\,. \tag{19}$$

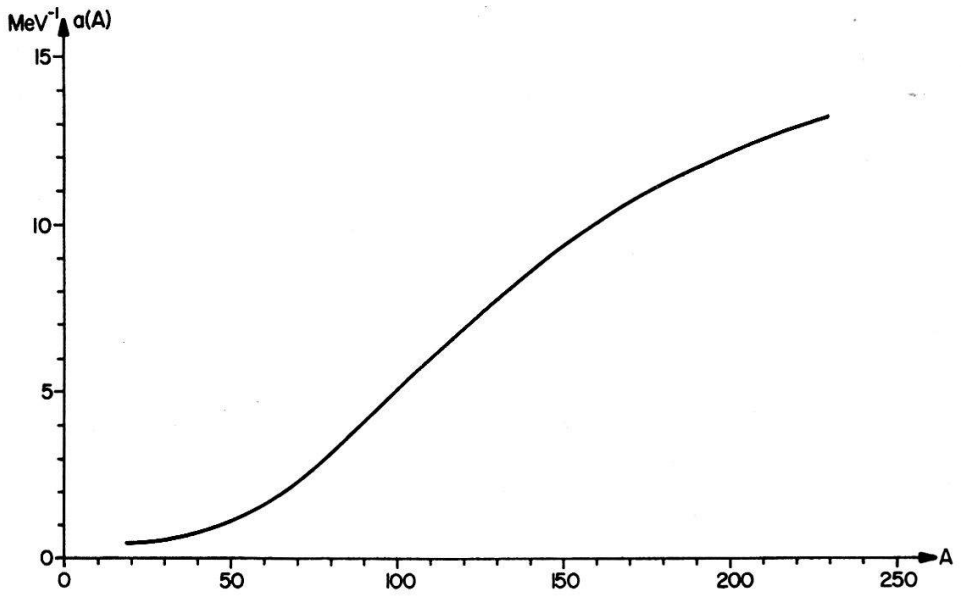
M_t, S_t und ε bedeuten Masse, Spin und kinetische Energie des emittierten Tritons. Q_t ist der Q-Wert der (n, t)-Reaktion. Mit (17) und (19) erhält man somit für den totalen (n, t)-Querschnitt den Ausdruck

$$\sigma_{(n,t)}(E) = \sigma_c^n\,(E)\,\frac{M\,(2\,S_t + 1) \int_0^{E+Q_t} \varepsilon\,\sigma_c^t(\varepsilon)\,\omega\,(E + Q_t - \varepsilon)\,d\varepsilon}{\sum_i M_i\,(2\,S_i + 1) \int_0^{E+Q_i} \varepsilon\,\sigma_c^i(\varepsilon)\,\omega\,(E + Q_i - \varepsilon)\,d\varepsilon}\,. \tag{20}$$

Die Summe im Nenner erstreckt sich über alle Teilchensorten i, die vom Compoundkern emittiert werden können. Bei der numerischen Auswertung wurde dabei die Emission von Neutronen, Protonen, Deuteronen, Tritonen und α-Teilchen berücksichtigt. Der Neutronenterm überwiegt wegen des Fehlens einer Coulombbarriere zwar in den meisten Fällen, doch kann, besonders bei hohen Energien, die Proton- bzw. α-Emission einen nahezu gleich grossen Beitrag liefern. Die Niveaudichte ω des Restkerns, der nach der Emission des Tritons im Anregungszustand $E^* = (E + Q_t - \varepsilon)$ verbleibt, lässt sich durch die Funktion

$$\omega(E^*) = C(A)\,\chi\,e^{2\sqrt{a(A)\,E^*}} \tag{21}$$

darstellen, die auf Grund thermodynamischer Überlegungen hergeleitet werden kann. Die nur von der Massenzahl A abhängigen Parameter $C(A)$ und $a(A)$ sind so angepasst, dass (21) die experimentell bestimmten Niveaudichten richtig wiedergibt. Bei der Berechnung von $\sigma_{(n,t)}$ nach (20) entfällt $C(A)$ in guter Näherung. $a(A)$ ist in Figur 6 als Funktion der Massenzahl aufgetragen. Es ist bemerkenswert, dass Unsicherheiten in $a(A)$ das Resultat umso stärker beeinflussen, je grösser Q_t ist. Der Faktor χ berücksichtigt in grober Weise den Gerade-Ungerade-Charakter des Restkerns. Auf Grund neuerer Analysen eines umfangreichen experimentellen Materials geben G. Brown und H. Muirhead[22]) für χ die in Tabelle V enthaltenen Werte an.



Figur 6
Parameter $a(A)$ in der Niveaudichteformel (21).

Tabelle V
Parameter χ in der Niveaudichteformel (21).

Massenzahl A	Ordnungszahl Z	χ
u	u	1
u	g	1
g	u	2
g	g	1/6

Bei den Elementen Al, Mn, Co, Cu und Silber ist $\sigma_{(n,t)}$ praktisch unabhängig von χ. Um dies zu zeigen genügt es, in der Summe der Gleichung (20) nur das grösste Glied, nämlich die Wahrscheinlichkeit für die Neutronenemission, zu berücksichtigen. Der Restkern im Zähler ist dann vom gleichen Typus wie derjenige im Nenner, so dass χ herausfällt. Nach (20) lässt sich $\sigma_{(n,t)}$ berechnen, wenn alle Wirkungsquerschnitte σ_c^i für die Bildung des Compoundkerns bekannt sind. Als Einfangsquerschnitte wurden bei der numerischen Auswertung die von Weisskopf[21]) nach der Kontinuumstheorie berechneten Funktionen benützt. Die Werte für σ_c^t sind zwar nicht tabelliert, lassen sich aber durch ein einfaches Extrapolationsverfahren aus den Werten σ_c^p und σ_c^d gewinnen, wenn man die Massenabhängigkeit der Coulomb-Penetrabilität berücksichtigt. Tabelle VI enthält die nach (20) berechneten (n, t)-Querschnitte in Funktion der Neutronenenergie. Der Rechnung wurden die Q-Werte der Tabelle I sowie ein Nukleonenradius $r_0 = 1{,}4$ Fermi zugrundegelegt. Liegt ein Element als Isotopengemisch vor, so sind die angegebenen Wirkungsquerschnitte als Summe der Beiträge von den einzelnen Isotopen zu verstehen.

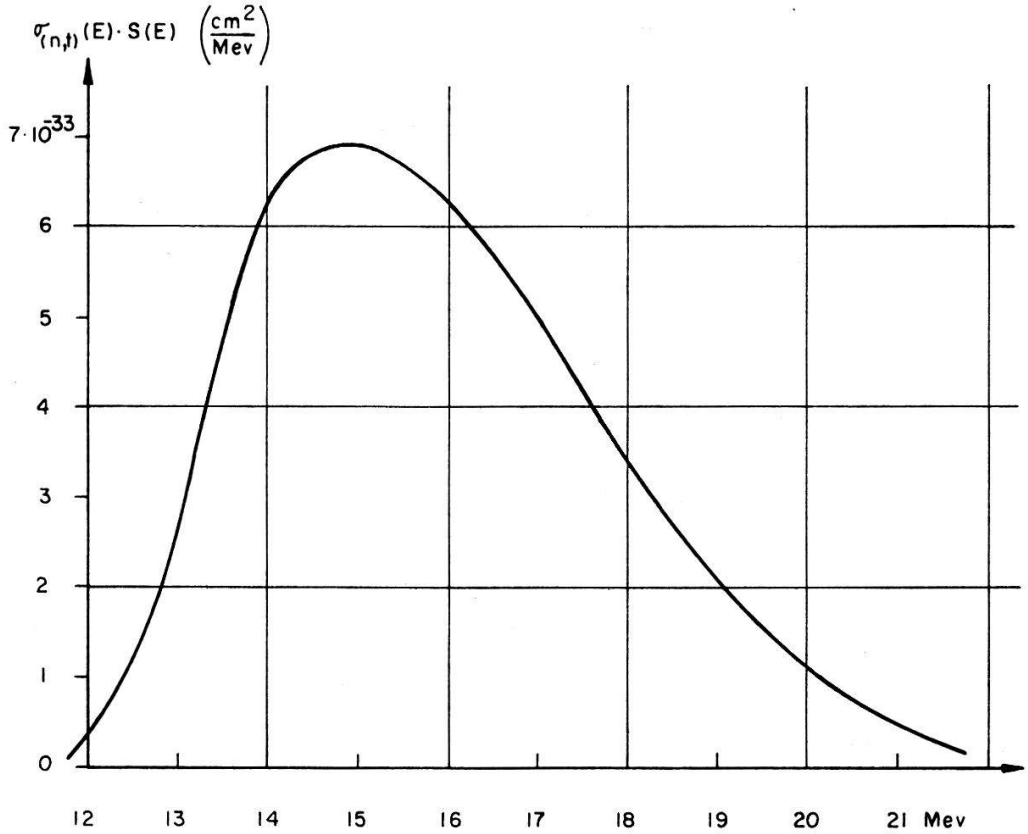
Die so ermittelten (n, t)-Querschnitte müssen schliesslich noch entsprechend (1) über das Fissionsspektrum $S(E)$ integriert werden, um einen Vergleich mit den experimentellen Resultaten zu ermöglichen. Der Integrand $\sigma_{(n,t)}(E)$. $S(E)$ zeigt für

Tabelle VI

Berechnete (n, t)-Querschnitte in Abhängigkeit von der Neutronenenergie.

Mev	Al *m* barns	Cr *m* barns	Mn *m* barns	Fe *m* barns	Co *m* barns	Ni *m* barns	Cu *m* barns	Ag μ barns
14	5,8		0,17		0,14		0,13	1,5
15	16		0,75		0,4		0,4	5,0
16	34	0,12	1,8	0,12	0,9	0,11	0,8	12
17	55	0,44	3,3	0,6	1,7	0,5	1,5	24
18	78	1,4	5,2	1,7	2,8	1,2	2,4	42
19	107	3,5	7,8	3,8	4,4	2,2	3,3	67
20		6,6		6,8	6,3	3,7	4,3	100

alle untersuchten Substanzen ausgeprägte Maxima bei Energien zwischen 15 und 18 Mev und Breiten von 4–5 Mev. Figur 7 zeigt den Verlauf dieser Funktion am Beispiel des Kupfers. In Tabelle VII sind nach der statistischen Theorie berechneten effektiven (n, t)-Querschnitte den analogen experimentellen Werten gegenübergestellt. Der grosse Schwankungsbereich bei Kobalt und Nickel ist eine Folge der starken Lithium-Verunreinigungen in diesen beiden Elementen. Bei allen übrigen Substanzen ist der mittlere Fehler von σ_{eff}^{exp} kleiner als 20% und wird fast ausschliesslich durch die Unsicherheit in den Wirkungsquerschnitten der Monitorreaktionen bestimmt.



Figur 7

$\sigma_{(n,t)}(E)\ S(E)$ als Funktion der Neutronenergie am Beispiel des Kupfers.

Tabelle VII
Effektive Wirkungsquerschnitte für die (n, t)-Reaktionen.

Element	$\sigma_{eff}^{exp}(10^{-30}\ \mathrm{cm}^2)$	$\sigma_{eff}^{theor}(10^{-30}\ \mathrm{cm}^2)$	$\sigma_{eff}^{exp}/\sigma_{eff}^{theor}$
$_{13}Al$	0,26 ± 0,04	1,40	0,19
$_{24}Cr$	0,062 ± 0,01	0,012	5,1
$_{25}Mn$	0,17 ± 0,03	0,064	2,7
$_{26}Fe$	0,056 ± 0,01	0,013	4,3
$_{27}Co$	$0{,}05 < \sigma < 0{,}13$	0,036	1,5...4
$_{28}Ni$	$\sigma < 0{,}05$	0,0084	< 6
$_{29}Cu$	0,073 ± 0,01	0,035	2,1
$_{47}Ag$	0,019 ± 0,003	0,0005	38

Leider sind die theoretischen Werte für den Querschnitt mit sehr viel grösseren Ungenauigkeiten behaftet. Bei den (γ, t)-Messungen von F. HEINRICH und H. WÄFFLER[23, 27]) verursachten die ungenauen Bindungsenergien weitaus die grössten Fehler. Dies ist hier nicht mehr der Fall, da in der neueren Literatur[6]) weit genauere Q-Werte zur Verfügung stehen. Die Unsicherheit in der Wahl der zur Berechnung von $\sigma_{(n,t)}$ notwendigen Kernradien erzeugt Schwankungen von etwa 30%, wenn r_0 um 10% verändert wird. In erster Linie wird der Variationsbereich von σ_{eff}^{theor} jedoch durch die ungenaue Kenntnis der Niveaudichte des Restkerns bestimmt. Dabei fällt besonders der Parameter $a(A)$ ins Gewicht. Eine durchaus zulässige Vergrösserung von $a(A)$ um 50% ändert zum Beispiel den theoretischen Wert für σ_{eff} von Kupfer um einen Faktor 3. In Anbetracht der grossen, aber auf Grund der heute zur Verfügung stehenden numerischen Unterlagen nicht zu vermeidenden Unsicherheiten in den theoretischen Werten kann man bei den Elementen Al, Cr, Mn, Fe, Co, Ni und Cu eine Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment feststellen. Bei Silber hingegen muss zur Erklärung des unverhältnismässig grossen (n, t)-Querschnittes sicher ein anderes Reaktionsmodell benützt werden. Man kann sich vorstellen, dass das einfallende Neutron – ohne den Kern als Ganzes anzuregen – ein Nukleon herausschlägt, das beim Durchdringen der Kernoberfläche weitere Nukleonen anlagert. Wenn ein solcher Direkt-Prozess stattfindet, so ist auch zu erwarten, dass bei der (p, t)-Reaktion die Tritonen – zum mindesten teilweise – durch diesen «pick-up»-Prozess gebildet werden. Dies ist auch tatsächlich von B. L. COHEN, A. G. RUBLIN und C. B. FULMER[24]) beobachtet worden.

Da bei einem Direkt-Prozess den emittierten Tritonen im Mittel eine höhere kinetische Energie mitgeteilt wird als bei der Emission aus einem Compoundzustand, vermag das Teilchen die Coulombbarriere leichter zu durchdringen, ein Effekt, der sich bei kleinen und mittleren Anregungsenergien mit zunehmender Ordnungszahl stärker ausprägt. Im Falle des Silbers scheint daher der Direktprozess den statistischen Anteil des Reaktionsmechanismus zu überdecken. Bei den übrigen untersuchten Elementen mit $Z < 30$ darf im betrachteten Energiebereich der Direktanteil – soweit es den totalen (n, t)-Querschnitt betrifft – vernachlässigt werden.

Bemerkenswert ist ferner, dass sich in der Gruppe der unmittelbar benachbarten Elemente Cr, Mn, Fe, Co, Ni und Cu die Materialien Cr, Fe und Ni dadurch auszeichnen,

dass ihre experimentellen Wirkungsquerschnitte merklich oberhalb der theoretischen Werte liegen. Das ist insofern auffällig, als innerhalb dieser Gruppe alle Rechenparameter wie zum Beispiel die Funktion $a(A)$ in der Niveaudichteformel nur wenig variieren. Dagegen zeigt es sich, dass der Gerade-Ungerade-Faktor χ bei Cr, Fe und Ni im Gegensatz zu den übrigen Elementen der Gruppe bei der Auswertung gemäss (20) nicht herausfällt. Es scheint also, dass der Unterschied in der Niveaudichte zwischen Kernen mit gerader und ungerade Massenzahl noch ausgeprägter sein muss, als auf Grund von Messungen von G. BROWN und H. MUIRHEAD[22]) angenommen wurde.

Diese Untersuchungen wurden durch Kredite der Kommission für Atomwissenschaften des Schweizerischen Nationalfonds ermöglicht. Dem Eidgenössischen Institut für Reaktorforschung sei für die Ausführung zahlreicher Bestrahlungen sowie für die Herstellung der Aluminium-Lithium-Legierung gedankt. Herrn Dr. F. STUBER danken wir für seine Hilfe bei der Nickel-Kobalt-Trennung.

7. Literaturverzeichnis

1) B. D. KERN und W. E. KREGER, Phys. Rev. *112*, 926 (1958).
2) GLEEN M. FRYE, Jr. Phys. Rev. *93*, 1086 (1954).
3) M. E. WYMAN, E. M. FRYER, M. M. THORPE, Phys. Rev. *112*, 1264 (1958).
4) E. L. FIREMAN, Phys. Rev. *91*, 922 (1953).
5) E. B. PAUL und R. L. CLARKE, Can. J. Phys. *31*, 267 (1953).
6) VAL. J. ASHBY und HENRY C. CATRON, *Tables of Nuclear Reaction Q-Values*. University of California Radiation Lab. UCRL-5419.
7) D. L. HILL, Phys. Rev. *87*, 1034 (1952).
8) B. E. WATT, Phys. Rev. *87*, 1037 (1952).
9) J. A. GRUNDL, R. L. HENKEL und B. L. PERKINS, Phys. Rev. *109*, 425 (1958).
10) B. D. KERN, W. E. THOMPSON und J. M. FERGUSONN, Nuclear Physics *10*, 226 (1959).
11) S. YASUMI, J. Phys. Soc. Japan *12* 443 (1957).
12) Neutron Cross Sections, Brookhaven National Lab. BNL-325.
13) K. H. PURSER und E. W. TITTERTON, Australian National University ANU/P-200 (Nov. 1958).
14) E. R. HARRISON und L. C. W. HOBBIS, Rev. Sci. Instr. *26*, 305 (1955).
15) W. F. LIBBY und R. L. WOLFGANG, Phys. Rev. *85*, 437 (1952).
16) A. G. ENGELKEMEIER und W. F. LIBBY, Rev. Sci. Instr. *21*, 550 (1950).
17) W. W. HOVENS JR. und L. J. RAINWATER, Phys. Rev. *70*, 154 (1946).
18) C. H. WESTCOTT, W. H. WALKER and T. K. ALEXANDER, *Effective Cross Sections and Cadmium Ratios for the Neutron Spectra of Thermal Reactors*. Atomic Energy of Canada AECL-612 (1958).
19) C. H. WESTCOTT, *Effective Cross Section Values for Well-Moderated Thermal Reactor Spectra*. Atomic Energy of Canada AECL-670 (1958).
20) F. C. HEINRICH, *Die Emission von Tritonen bei photonuklearen Reaktionen*. Zürich 1960, unveröffentlicht.
21) J. M. BLATT und V. F. WEISSKOPF, *Theoretical Nuclear Physics*, (John Wiley and Sons, New York (1952).
22) G. BROWN und H. MUIRHEAD, Phil. Mag. *2*, 473 (1957).
23) F. HEINRICH und H. WÄFFLER, Helv. Phys. Acta *29*, 232 (1956).
24) B. L. COHEN, A. G. RUBIN und C. B. FULMER, *Nuclear Reaction Studies with 23 Mev Protons*. Comptes rendus du Congrès International de Physique Nucléaire. Paris 1958.
25) G. E. MOORE und K. A. KRAUS, J. Am. Chem. Soc. *74*, 843 (1952).
26) G. E. MOORE und K. A. KRAUS, J. Am. Chem. Soc. *75*, 1460 (1953).
27) F. HEINRICH und H. WÄFFLER, Physica *XXII*, 1146 (1957).
28) F. HEINRICH, H. WÄFFLER und M. WALTER, Helv. Phys. Acta *29*, 3 (1956).