

Bestimmung der Diffusionslänge thermischer Neutronen in schwerem Wasser

Von R. u. K. Döpel und W. Heisenberg¹

1. Problemstellung

Für die Frage der Verwendbarkeit von D_2O in der 238-Maschine ist die Absorption von Neutronen in D_2O von entscheidender Bedeutung. Diese Absorption ist wahrscheinlich sehr gering, und es war die Aufgabe der im folgenden beschriebenen Experimente, zum mindesten eine obere Grenze für die Absorption festzulegen, die über die Verwendbarkeit von D_2O entscheidet. Die Absorption wird am einfachsten durch die „Diffusionslänge“ gemessen, die in dem Bericht I des einen von uns zu etwa 34 cm abgeschätzt worden ist. Wenn die Diffusionslänge größer als etwa 30 cm ist, so ist nach der bisherigen Kenntnis der Konstanten von 238 das schwere Wasser für die Maschine verwendbar.

Da für die Experimente in Leipzig nur etwa 9 l D_2O zur Verfügung standen, eine Menge, bei der die Neutronenabsorption die Neutronenintensität höchstens in der Größenordnung einiger Prozente beeinflusst, mußte eine Versuchsanordnung gewählt werden, für die der theoretische Intensitätsverlauf völlig genau bekannt ist und bei der die Messungen nur relative Fehler von einigen Tausendstel aufweisen dürfen.

Die Theorie der Meßanordnung beruht auf folgender Überlegung: Wenn in irgendeinem Raumgebiet von der Entstehung thermischer Neutronen abgesehen werden kann, so wird in diesem Gebiet die Verteilung der thermischen Neutronen durch die Diffusionsgleichung (ϱ Dichte, l Diffusionslänge)

$$l^2 \Delta \varrho - \varrho = 0 \quad (1)$$

bestimmt. Wenn ferner die thermischen Neutronen von einer Kugelfläche vom Radius R mit gleichförmiger Intensität emittiert werden, so muß nach (1) im Innern der Kugel die Dichteverteilung durch die Gleichung

$$\varrho = \frac{\sinh r/l}{r/l}, \quad (2)$$

also für $R \ll l$ durch

$$\varrho = \varrho_0 \left(1 + \frac{1}{6} \frac{r^2}{l^2} \right) \quad (3)$$

gegeben sein. Eine Messung von ϱ im Zentrum und am Rande der Kugel führt also sofort zu einer Bestimmung der Diffusionslänge.

¹ Undated, but according to KWI-List dated 7 August 1940. (Editor)

Die Wirkung einer beliebig gestalteten Quelle thermischer Neutronen kann man experimentell stets dadurch untersuchen, daß man sich statt der Quelle eine Senke thermischer Neutronen der gewünschten Form aus Cd herstellt und sie in ein Gefäß bringt, in dem durch irgendeine andere Quelle Neutronen beliebiger Energieverteilung vorhanden sind. Dann vergleicht man jeweils an irgendeinem Punkte die Neutronenintensität mit und ohne Cd. Die Differenz entspricht der Neutronenverteilung, die durch die (negative!) Cd-Neutronen-Quelle erzeugt wird.

Die kugelflächenförmige Quelle thermischer Neutronen, die zur Verteilung (2) führt, wurde also in folgender Weise hergestellt:

2. Versuchsanordnung

a) Neutronenquelle

In einem zylindrischen mit H_2O gefüllten Bottich ($h = 80$ cm; $r = 40$ cm) hängt eine Al-Kugel ($r = 12$ cm; Wandstärke 2 mm), die durch einen 7 cm weiten und 35 cm langen Hals mit D_2O gefüllt werden kann. Der Hals wird durch ein mit Paraffin gefülltes Messingrohr geschlossen, das an seinem unteren Ende mit Al bedeckt ist; die D_2O -Kugel wird also allseitig durch Al begrenzt.

Im Zentrum dieser Kugel hängt nun die Neutronenquelle (ca. 480 mg Ra + Be in einer Nickelkugel von 9 mm Radius und 0.2 mm Wandstärke). Die Neutronen durchlaufen das D_2O vorzugsweise als rasche Neutronen, werden in dem umgebenden H_2O gebremst und teilweise wieder als langsame Neutronen in das D_2O zurückgestreut. Die Abnahme dieser Neutronen von der Peripherie der D_2O Kugel nach der Mitte zu wird gemessen.

- 3 Nun emittiert aber auch schon die (Ra + Be) Neutronenquelle einen kleinen Teil thermischer Neutronen, außerdem wird ein Teil der raschen Neutronen (insbesondere von $\{\text{Ra} \gamma \rightarrow \text{D}_2\} = \text{Photoneutronen in } \text{D}_2\text{O}\}$) bereits auf thermische Energie abgebremst. Diese Neutronen müssen wir von den insgesamt vorhandenen Neutronen abziehen können, um nur die Neutronen zu bekommen, die an der H_2O Begrenzung nach innen laufen. Das wird dadurch erreicht, daß die Neutronenintensität einmal in der genannten Al-Kugel und ein zweites Mal in einer gleichen, aber außen mit 1 mm Cd belegten Kugel gemessen wird. In der Al-Kugel mißt man alle thermischen Neutronen, in der Cd-Kugel nur die, die nicht von außen kommen; außerdem in beiden Fällen (je nach dem Indikator) eine gewisse Menge nichtthermischer Neutronen, die bei der Differenzbildung herausfällt. Die Differenz besteht also aus den thermischen Neutronen, die von außen in die D_2O -Kugel kommen.

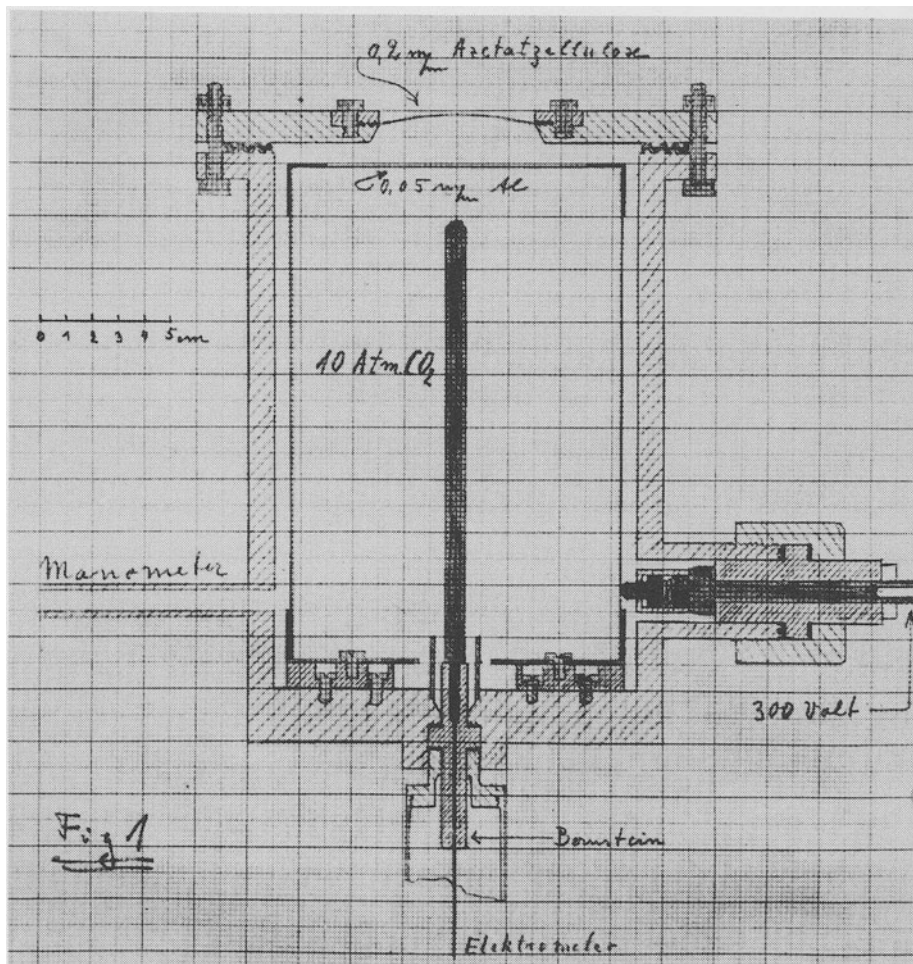
b) Indikator

Als Indikator für thermische Neutronen wurde eine sehr dünne Schicht Dy_2O_3 gewählt; dessen β -Aktivität ist ein Maß für die Neutronendichte an der Expositionsstelle. Es war bekannt, daß Dy fast nur auf thermische Neutronen anspricht.

Seine Aktivierung durch thermische und nichtthermische Neutronen im Paraffin wurde aber nochmals besonders bestimmt (Aktivierung ohne und mit Cd-Bedeckung in Paraffin). Die Aktivierung durch nichtthermische Neutronen beträgt weniger als 1% der Aktivierung durch thermische Neutronen. Das Dy_2O_3 wurde mit wenig Schellack auf einen dünnen Al-Teller aufgetragen ($\varnothing = 5 \text{ cm}$) und mit Al-Folie bedeckt. Mittels Al-Draht konnte es am Boden des Kugelabschlußzylinders befestigt und in verschiedener Höhe der D_2O -Kugel exponiert werden.

c) Ionisationskammer

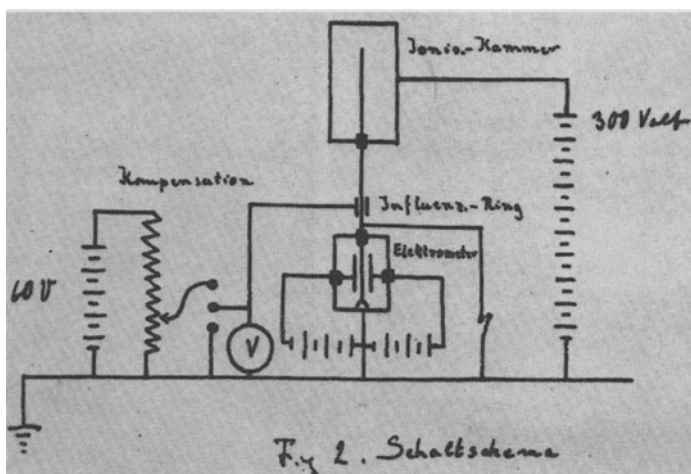
Der zu erwartende kleine Absorptionseffekt erfordert große Genauigkeit, daher wurde für die Hauptmessung kein β -Zählrohr, sondern eine Ionisationskammer benutzt. Bei dieser lassen sich leicht große β -Intensitäten verwenden, so daß eine statistisch bedingte Ungenauigkeit gering wird (Fig. 1).



- 5 Die Ionisationskammer besteht aus einem Druckkessel, gefüllt mit 10 Atü CO_2 . Oben ist er durch eine 0,2 mm dicke Azetatzellulose-Folie verschlossen, Durchmesser 6 cm, die durch 6 ca. 1 mm dicke Stahldrähte gestützt wird, die höchstens 8% der Gesamtfläche verdecken. Die Folie läßt 75% der auffallenden Dy- β -Strahlen durch; sie wurde alle 8 Tage erneuert und ist unter diesen Umständen nie² geplatzt. In der Druckkammer befindet sich die eigentliche Ionisationskammer, nach oben abgedeckt durch Al-Folie ($d = 0,05$ mm). Die Kammer-spannung betrug 300 Volt (Trockenbatterie).

d) Ladungsmessung

Die Innenladung wurde mit einem Wulfschen Elektromesser (1 Skalenteil $2 \cdot 10^{-2}$ Volt) mittels Kompensation bestimmt (Fig. 2).



- 6 Dabei wurde der Elektrometerfaden bei dauernder Kompensation so lange aufgeladen, bis die anzuwendende Kompensationsspannung stets denselben Wert erreichte. Dadurch wurde die Messung auf eine reine Zeitvergleichsmessung zurückgeführt. Um von etwaigen Änderungen der Empfindlichkeit der Gesamtanordnung unabhängig zu sein, wurde die Dy-Aktivität stets durch die Aktivität eines abgeglichenen Th- β -Eichpräparates dividiert.

² Bei einer anderen Sendung von Azetatzellulose-Folien, die wir bei einer nachträglichen Kontrollmessung verwendeten, traten allerdings Schwierigkeiten auf, sodaß wir bei dieser letzten Messung die Folie doppelt nehmen mußten.

3. Gang einer Messung und Auswertung

Der Dy-Indikator wurde über Nacht 15 h exponiert. Dann wurde zunächst des Reststrom gemessen, den die Ionisationskammer auch ohne zusätzliche Bestrahlung lieferte, anschließend durch die Ionen-Ausbeute des Th-Eichpräparates bestimmt, während dieser Zeit (ca. 45 Min.) konnte die ebenfalls erregte Aktivität des aus Al bestehenden Dy-Trägers vollständig abklingen. Dann erst wurde mit der Dy-Aktivitätsmessung begonnen. Wegen der zeitlichen Abnahme dieser Aktivität mußte der Kompensationsapparat bei dauernder Beobachtung des Elektrometerfadens mit der Hand gesteuert werden, bis eine gewählte Kompensationsspannung von 15, bez. 60 Volt erreicht war. Dies war je nach dem Zeitpunkt der Messung, dem Ort der Exposition usw. in 2 – 12 Minuten der Fall; anschließend daran wurde die Dy-Aktivitätsmessung mehrere Male wiederholt, im ganzen etwa eine Stunde lang beobachtet. Danach wurde die obige Reststrom- und Eichpräparatsmessung wiederholt und zwar so oft, bis ihre Fehler in der Nähe derer der Dy-Messung lagen. Die Auswertung geschah in folgender Weise: Von der für eine bestimmte Kammerbestrahlungszeit erforderlichen Kompensationsspannung war diejenige Spannung abgezogen, die zur Kompensation des Reststromes während jener Zeit notwendig gewesen wäre. Die verbleibende Spannung dividiert durch jene Zeit ist ein Maß für die Dy-Aktivität zur Zeit der Messung; so in aufeinanderfolgenden Zeiten bestimmten Dy-Aktivitäten wurden mittels der sich aus allen Aktivitäten ergebenden Dy-Abklingzeit auf eine bestimmte Zeit nach Schluß der Exposition reduziert und gemittelt. Dieses Mittel wurde durch eine auf gleiche Weise ermittelte Th-Eichaktivität dividiert.

7

4. Ergebnisse

a) Mit dem Dysprosium-Indikator von 0,08 g Dy_2O_3 wurden für das Verhältnis der Intensität zur Intensität des Eichpräparates folgende Werte gefunden (r Abstand des Indikatormittelpunktes vom Zentrum der Kugel):

Tabelle 1

$r =$	Al ohne Cd		Al mit Cd		Differenz	
	0,9 cm	10,5 cm	0,9 cm	10,5 cm	0,9 cm	10,5 cm
1. Meßreihe	1,357 $\pm 0,0057$	1,221 $\pm 0,0045$	0,2271 $\pm 0,0027$	0,0801 $\pm 0,0022$	1,130 $\pm 0,0064$	1,141 $\pm 0,0050$
2. Meßreihe	1,350 $\pm 0,0083$	1,213 $\pm 0,0060$	0,2241 $\pm 0,0028$	0,0731 $\pm 0,0024$	1,126 $\pm 0,0088$	1,1395 $\pm 0,0065$
3. Meßreihe	0,1355 $\pm 0,00060$	0,1209 $\pm 0,00045$	0,02498 $\pm 0,00035$	0,00905 $\pm 0,00031$	0,11049 $\pm 0,00069$	0,11184 $\pm 0,00054$

Die Einzelwerte der drei Meßreihen können nicht unmittelbar miteinander verglichen werden, da langsame Veränderungen des Indikators beobachtet wur-

den, die vielleicht auf das schwache Anklingen einer Aktivität sehr langer Lebensdauer hindeuten, und da für die dritte Meßreihe ein anderes Eichpräparat verwendet wurde. Die Verhältnisse der Differenzen sind jedoch vergleichbar:

Tabelle 2

	1. Meßreihe	2. Meßreihe	3. Meßreihe	Mittelwert
Diff. ($r = 10,5$)	1,00975 \pm 0,0072	1,0120 \pm 0,0097	1,0122 \pm 0,0080	1,0111 \pm 0,0048
Diff. ($r = 0,9$)				

Aus den drei Meßreihen ergibt sich also:

$$\frac{\text{Differenz } (r = 10,5)}{\text{Differenz } (r = 0,9)} = 1,0111 \pm 0,0048 \text{ .}$$

8 b) Dieses Ergebnis kann noch nicht unmittelbar zur Bestimmung der Diffusionslänge benützt werden, da vorher noch gewisse Korrekturen zu berücksichtigen sind. Die Neutronenverteilung (2) kann nämlich noch gestört werden durch

- 1) Die Absorption thermischer Neutronen in der Ra-Be-Quelle.
- 2) Die Absorption im Indikator.
- 3) Durch Abweichungen von der Kugelsymmetrie, die etwa durch den Flaschenhals bedingt sind.

Das Experiment wurde von vornherein so eingerichtet, daß die drei Korrekturen möglichst klein bleiben. Zur Ermittlung der Korrekturen (1) und (2) wurde eine Kontrollmessung ausgeführt, bei der ein etwa 6 mal stärkerer Dysprosium-Indikator benützt wurde; gleichzeitig wurde die in Nickel gefaßte Ra-Be-Quelle, an der die Hauptabsorption wohl durch die Nickelhülle bedingt war, mit einer stärkeren Nickelhülle umgeben, so daß auch die Gesamtmenge des Nickels etwa auf das sechsfache erhöht wurde. Mit dieser etwa 6-fachen Dy- und Ni-Menge wurden die folgenden Werte gefunden:

Tabelle 3

$r =$	0,9 cm	10,5 cm
Al ohne Cd	7,6750 \pm 0,0212	7,3517 \pm 0,0233
Al mit Cd	1,1159 \pm 0,0048	0,4298 \pm 0,006
Differenz	6,5591 \pm 0,022	6,9219 \pm 0,023

Für das Verhältnis der Differenz ergibt sich jetzt:

$$\frac{\text{Differenz } (r = 10,5)}{\text{Differenz } (r = 0,9)} = 1,055 \pm 0,005 \text{ .}$$

Theoretische Überlegungen zeigen, daß die Absorption in der Ra-Be-Quelle zu einer Erhöhung, die Absorption im Indikator zu einer Erniedrigung des Verhältnisses der Differenzen führen muß. Das experimentelle Ereignis zeigt, daß der Einfluß der Absorption in der Quelle überwiegt.

Die Abweichungen von der Kugelsymmetrie (3) wurden so klein wie möglich gehalten, außerdem wurden die Intensitätsmessungen stets in der unteren Kugelhälfte ausgeführt. Bei einer Kontrollmessung bei $r = 10.5 \text{ cm}$ wurde in der Kugel aus Al ohne Cd einmal der Flaschenhals ohne Cd, einmal *mit* Cd benützt. Selbst eine solche grobe Abweichung von der Kugelsymmetrie ergab nur eine Intensitätsänderung von wenigen Prozent. Auch wenn der Einfluß bei $0,9 \text{ cm}$ erheblich größer ist, kann man also wohl die durch die kleinen Abweichungen von der Kugelsymmetrie hervorgerufenen Fehler völlig vernachlässigen.

Extrapoliert man von den beiden Messungen Tabelle 2 und Tabelle 3 auf verschwindende Menge Dy_2O_3 und Ni, so erhält man als endgültigen Wert für das Verhältnis der Differenzen:

$$\frac{\text{Differenz } (r = 10,5)}{\text{Differenz } (r = 0,9)} = 1,0023 \pm 0,005 \quad (4)$$

für verschwindende Ni- und Dy_2O_3 -Menge. Es folgt also aus (2):

$$\frac{r^2}{l^2} = 0,0138 \pm 0,030 \quad (5)$$

Der eingegebene Fehler ist hierbei als mittlerer Fehler aufzufassen. Berechnet man aus (5) die Diffusionslänge l , so kann man also schließen, daß l wahrscheinlich etwa 90 cm ist. Ein Wert von l , der kleiner wäre als 39 cm (was dem doppelten mittleren Fehler entspricht), kann als sehr unwahrscheinlich angesehen werden, auch dieser Wert ist aber noch höher als der früher geschätzte Wert von 34 cm .

Berechnet man aus der Diffusionslänge oder aus (5) die Summe der Einfangwirkungsquerschnitte der absorbierenden Atome (auf ein D-Atom bezogen, d. h. $\sigma = \sigma_D + \frac{1}{2}\sigma_O + \sigma_{\text{Verunreinigung}}$), so erhält man, wenn man die freie Weglänge der thermischen Neutronen für elastische Stöße zu $1,7 \text{ cm}$ annimmt (vgl. Bericht I, S. 10, Tabelle 2 u. 3):

$$\sigma = 0,0767 (r/l)^2 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \quad \text{also}$$

$$\sigma = (0,0011 \pm 0,0023) \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \quad .$$

Im Bericht I war der Wert $\sigma = 0,0075 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ vorausgesetzt worden.

5. Zusammenfassung

10

Durch die beschriebenen Experimente wird festgestellt, daß die Diffusionslänge in D_2O wahrscheinlich erheblich höher, die Absorption also erheblich niedriger ist, als im Bericht I des einen von uns angenommen wurde. Daraus muß ge-

geschlossen werden, daß – wenn die bisher angenommenen Daten über das Präparat 238 richtig sind – *aus D_2O und 238 eine Maschine zur Energieerzeugung gebaut werden kann*. Die Ergebnisse von [Abschn.] 4 lassen sogar die Möglichkeit offen, daß D und O praktisch überhaupt nicht absorbiert, daß vielmehr die ganze von uns gemessene Absorption durch die Verunreinigung des D_2O durch gewöhnliches Wasser (ca. 1/2% H_2O) bedingt war. In der Tat gäbe eine Verunreinigung durch 1/2% H_2O und verschwindende Absorption in D_2O für σ den Wert $0,0012 \cdot 10^{-24} [cm^2]$.