

# **BAM-BERICHT Nr. 17**

DER BUNDESANSTALT FÜR  
MATERIALPRÜFUNG (BAM)

BERLIN

## **Aktivierungsanalyse mit schnellen Neutronen, Photonen und geladenen Teilchen**

von Dr.- Ing. Peter Reimers



	Seite
1. Ziel des Studienaufenthaltes in Saclay	1
2. Der Elektronenlinearbeschleuniger in Saclay	2
3. Neutronenproduktion	3
3.1 Urantarget in Saclay	3
3.2 Einige Aspekte der Neutronenproduktion durch Elektronen	3
3.3 Aktivierungsanalyse mit schnellen Neutronen	4
4. Photonenproduktion	6
4.1 Einige Aspekte der Photonenproduktion durch Abbremsen energiereicher Photonen	6
4.2 Bremsstrahlungstarget	7
4.3 Aktivierungsanalyse mit energiereichen Photonen	8
5. Aktivierungsanalyse mit geladenen Teilchen	11
5.1 Unterschied zur Aktivierung mit Photonen	11
5.2 Methoden zur Kalibrierung	11
5.3 Methode der äquivalenten Dicke	11
5.4 Integrale Aktivierungskurven	12
6. Das mit Dr. Engelmann vereinbarte Arbeitsprogramm	14
6.1 Bestimmung von O in Na	14
6.2 Bestimmung der Elemente N und C durch Photonenaktivierung	17
6.3 Nachweis des Isotops $O^{15}$	17
7. Besichtigung des Laboratoriums Pierre Süe	20
Schrifttum	21
Anhang	23



Der Studienaufenthalt, über den im folgenden berichtet wird, ist durch die finanzielle Unterstützung durch das Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft (BMBW) ermöglicht worden. Der Bericht bringt hierdurch dem BMBW und insbesondere dem Leiter des Referats Kernchemie, Strahlennutzung und Isotopentechnik, Herrn Ministerialrat Dr. Giese, seinen besonderen Dank dafür zum Ausdruck.

Dem Präsidenten der Bundesanstalt für Materialprüfung (BAM), Herrn Prof. Dr. Pfender, dankt der Bericht für seine Zustimmung, dem Leiter der Fachgruppe "Kerntechnik", Herrn Prof. Dr. Neider, für seine Unterstützung bei der Vorbereitung dieses Studienaufenthaltes.

Schließlich sei auch der Administration des Centre d'Etudes Nucléaires Saclay für die Ermöglichung des Studienaufenthaltes gedankt. Der Dank des Berichters gilt ferner ganz besonders dem Leiter der Groupe d'Analyse par Réactions Nucléaires (GARN), M. Ch. Engelmann, für die Aufgabenstellung, sein stetes Interesse und die zahlreichen Diskussionen, die den Studienaufenthalt zu seinem beabsichtigten Erfolg verholfen haben.



Die BAM plant seit mehreren Jahren die Beschaffung eines Elektronenlinearbeschleunigers, der zu ca. 60 % seiner Betriebszeit von der Fachgruppe 6.3 für die Aktivierungsanalyse genutzt werden soll. Inzwischen ist die Maschine bestellt worden. Sie wird von der Firma Vickers geliefert und soll im Jahr 1972 in Betrieb genommen werden. Um die zu erwartenden technischen Probleme mit höchstem Wirkungsgrad lösen zu können, wurde über das aus Mitteln des BMBW geförderte Forschungsvorhaben StN 432-70 ein halbjähriger Studienaufenthalt eines Fachgruppenmitgliedes in Centre d'Etudes Nucléaires Saclay, Frankreich, finanziert. Im dortigen Kernforschungszentrum besteht seit einigen Jahren eine Arbeitsgruppe, die Aktivierungsanalyse mit Photonen und geladenen Teilchen betreibt. Durch die freundliche Bereitschaft ihres Leiters, Dr. Engelmann, und der französischen CEA-Administration war es möglich, alle Probleme in der Praxis zu studieren, die bei der Benutzung eines Elektronenlinearbeschleunigers für die Aktivierungsanalyse auftreten.

Dazu gehören:

- Energieabhängigkeit der wichtigsten Kernreaktionen
- Strahlenschutzprobleme
- Sicherheitsvorrichtungen
- Zuverlässigkeit und schwache Stellen der Maschine
- Strahlungsmeßtechnik und chemische Trennverfahren
- erforderliches Betriebspersonal
- erforderliche Geräte

Der BAM-Beschleuniger soll die in Tabelle 1 zusammengefaßten Eigenschaften haben. Mit einem derartigen Beschleuniger lassen sich sowohl energiereiche Photonen (Bremsstrahlung) als auch schnelle Neutronen (Kernphotoeffekt) mit relativ hoher Flußdichte erzeugen (vgl. Tab. 1). Beide Teilchensorten lassen sich für die Aktivierungsanalyse verwenden. In beiden Fällen müssen die energiereichen Elektronen auf Targetkerne hoher Ordnungszahl treffen, um die gewünschte Reaktion mit großem Wirkungsgrad auszulösen.

Natürlich treten immer beide Prozesse gleichzeitig auf, und es hängt sehr stark von der Konstruktion des Targets und der Anordnung der Bestrahlungsposition ab, welche Flußdichte größer ist. Für die Photonenproduktion haben sich am besten W und Pt bewährt. Beide Metalle haben die erforderliche hohe Ordnungszahl und einen hohen Schmelzpunkt; das ist sehr wichtig, denn die heute zur Verfügung stehenden Elektronenlinearbeschleuniger erreichen so hohe Strahlströme, daß die thermische Belastung des Targets ohne weiteres  $10 \text{ kW/cm}^2$  überschreiten kann.

Accelerator Parameters	Unit	Nominal Value	Minimum Guaranteed Value
Radio Frequency	MHz	2856	
R. F. Peak Power	MW	20	
R. F. Mean Power	kW	24	
R. F. Average Pulse Length	$\mu\text{sec}$	4.0	
R. F. Flat Top Pulse Length	$\mu\text{sec}$	3.4	
Repetition Rate	p. p. s	300, 150, 50 25, 12.5	
Length of Accelerating waveguide	metres	2 x 2	
Beam Pulse Length	$\mu\text{sec}$	3.2	3.0
Beam Repetition Rates	p. p. s.	As R. F.	
Open Circuit Energy	MeV	36	34
Loaded Energy	MeV	23	21.5
Loaded Pulse Current	Amps	.4	.35
Loaded Average Current	$\mu\text{Amps}$	380	300
Pulse Current at 30 MeV	Amps	.18	.14
Average Current at 30 MeV	$\mu\text{Amps}$	170	125
Minimum Energy	MeV	4	6.5 (max)
Beam Diameter at Target			
(a) up to 1kW beam power at low pulse current	mm'	1	2 (max)
(b) above 1kW mean electron power	mm	4	6 (max)
X-Ray Intensity on Axis at 1 metre			
(a) at 1kW mean electron power at 23 MeV	R/Min	10,000	8,500
(b) maximum	R/Min		
Maximum Neutron Yield	neutrons /sec	$1.5 \times 10^{13}$	$1.2 \times 10^{13}$
Neutron Yield at 30 MeV	neutrons /sec	$1.5 \times 10^{13}$	$1.1 \times 10^{13}$

Tabelle 1  
Wesentliche Parameter des BAM-Linearbeschleunigers nach der Spezifikation von Vickers

## 2. Der Elektronenlinearbeschleuniger in Saclay (60 – 80 MeV)

Der Linac hatte ursprünglich zwei Beschleunigungssektionen und ist stufenweise auf 4 Sektionen erweitert worden. Der Beschleuniger ist sehr ungünstig in einem engen Tunnel von nur zwei Meter Durchmesser aufgebaut. Man hat deshalb zu wenig Platz für die Wartung der Maschine, vor allem aber für Experimente. Durch die Strahlung der Wände ist die Strahlenbelastung der Mitarbeiter bei notwendigen Arbeiten sehr hoch (ca. 10 - 200 mrem/h). Es gibt nur 1 Strahlrohr, so daß die verschiedenen Targets dauernd ausgewechselt werden müssen:

- |   |       |            |
|---|-------|------------|
| a) Uran - Target für Neutronenflugzeitexperimente | 60 %) |            |
| b) Gold-Target für Positronenproduktionen         | 30 %) | Strahlzeit |
| c) Platin-Target für $\gamma$ -Aktivierung        | 10 %) |            |

Der Beschleuniger läuft oft von Montagmittag bis Freitagabend ohne Unterbrechung, was sich auf die Stabilität des Strahls sehr gut auswirkt.

Im Vakuumsystem haben sich Pfeiffer-Turbomolekularpumpen bestens bewährt (besser als Ionenpumpen oder Diffusionspumpen). Aus Sicherheits-

gründen wurde für jede Sektion eine Pfeiffer-Pumpe (THP 900, 260 l/sec) installiert).

Es gibt ein umfangreiches Sicherungs- und Warnsystem, damit der Operator nicht ständig am Bedienungspult sitzen muß. Man könnte die Maschine von einem kleinen Rechner steuern lassen, doch dafür fehlt im Augenblick das Geld. Für die BAM wäre diese Lösung besonders zu empfehlen, um das vorhandene Personal möglichst optimal und rationell einzusetzen. Die wichtigsten Daten über den Zustand und die Betriebsbedingungen der Maschine im November 1970 sind in dem beigefügten "dossier historique" zusammengefaßt. Für die Planung des Beschleunigerbetriebs in der BAM ist besonders darauf hinzuweisen, daß in Saclay nur für die Wartung und den Betrieb der Maschine neun Ingenieure und ein Diplom-Ingenieur angestellt sind. Ihre Aufgabe ist auf die Bereitstellung des Elektronenstrahls beschränkt. Allerdings muß in diesem Zusammenhang darauf hingewiesen werden, daß der Beschleuniger in Saclay wegen der höheren Maximalenergie mehr Betriebsaufwand erfordert als das von der BAM bestellte Gerät und darüber hinaus in täglich drei Schichten betrieben wird.



### 3.1 Urantarget in Saclay

Der Linearbeschleuniger in Saclay wird zu 60 % seiner Betriebszeit für neutronenphysikalische Experimente benutzt. Der Elektronenstrahl wird dabei auf ein Target aus Natur-Uran gelenkt, in dem nach der Umwandlung der kinetischen Energie der Elektronen in Bremsstrahlung durch die Reaktionen  $(\gamma, n)$  und  $(\gamma, f)$  Neutronen erzeugt werden. Das Uran-Target ist aus Sicherheitsgründen mit einem Doppelfenster abgeschlossen (Bild 1).

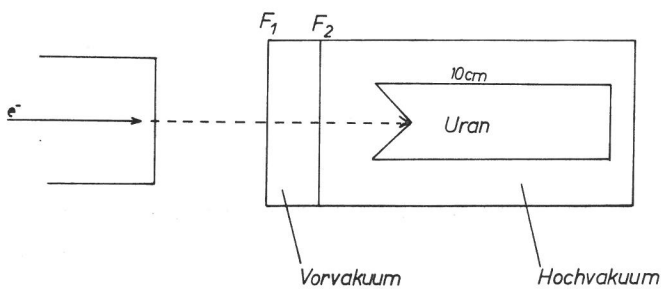


Bild 1  
Uran-Target

Sobald eines der beiden Fenster ein Leck bekommt, bricht entweder das Vorvakuum oder das Hochvakuum zusammen. Über ein Warnsystem wird sofort der Strahl unterbrochen.

### 3.2 Einige Aspekte der Neutronenproduktion durch Elektronen

Die Wahl eines möglichst schweren Targetkernes empfiehlt sich wegen der Z-Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes der  $(\gamma, n)$ -Reaktion (Bild 2)<sup>13)</sup>, wenn man eine hohe Ausbeute an Photoneutronen anstrebt. Im Falle des  $U^{238}$  geben die Spaltneutronen einen zusätzlichen Beitrag zur Neutronenausbeute.  $U^{235}$  würde eine um ca. 60 %

höhere Neutronenausbeute liefern, wird jedoch aus Sicherheitsgründen nicht verwendet. Der Konversionsgrad von Elektronen in Neutronen liegt in der Größenordnung von 1 - 2 %.

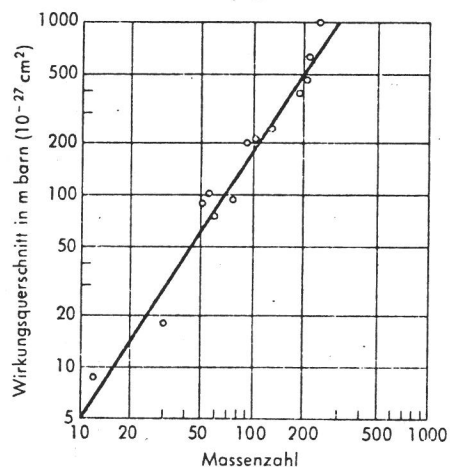
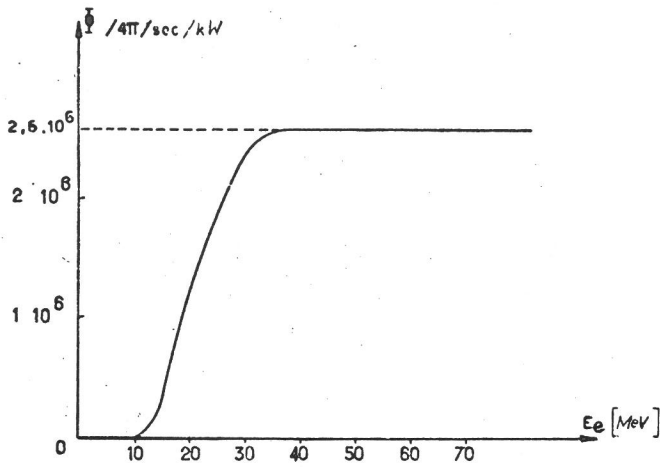


Bild 2  
Abhängigkeit des maximalen Wirkungsquerschnittes für die  $(\gamma, n)$ -Reaktion von der Massenzahl [nach R. Nathan und J. Halpern<sup>13)</sup>]

Die Abhängigkeit der Neutronenausbeute aus Natur-Uran von der Energie der einfallenden Elektronen ist in Bild 3<sup>2)</sup> wiedergegeben. Bei Energien über 35 MeV bleibt die Neutronenausbeute pro kW konstant:

$$\Phi = 2,6 \cdot 10^6 \frac{\text{Neutronen}}{4\pi \cdot \text{sec} \cdot \text{kW}}$$

Über 35 MeV ist also die Neutronenausbeute nur noch der Strahlleistung proportional, die entweder durch den Strom oder die Elektronenenergie erhöht werden kann. Andererseits ist in einem Beschleunigerwellenleiter der Anteil der HF-Energie, die auf den Strahl übertragen wird (d.h. der Wirkungsgrad) umso höher, je intensiver der



**Bild 3**  
Neutronenproduktion aus einem Natur-Uran-Target [Baldwin, G. C., Gaertner, E. R. und Yeater, M. L.: Phys. Rev. 104, 1652 (1956)]

Strahl ist. Im Hinblick auf die Neutronenproduktion ist es deswegen viel interessanter, große Ströme zu beschleunigen, als hohe Energien zu erzeugen.

Der Einfluß der Targetabmessungen wurde bereits 1959 von Barber und Georges <sup>1)</sup> studiert. Oberhalb einer Länge, die ca. 10 Strahlungslängen entspricht, bleibt die Neutronenausbeute konstant. Das Target in Saclay ist zylindrisch mit einem Durchmesser von 3 cm und einer Länge von 10 cm; es liefert bei 50  $\mu$ A mittlerem Strahlstrom ca.  $10^{12}$  n/sec/4 $\pi$ . Dieser Wert stellt eine sehr grobe Schätzung dar und ist nie genau gemessen worden, weil Neutronenexperimente nur an Strahlrohren durchgeführt werden. Das Energiespektrum der Neutronen aus einem Natur-Uran-Target wurde von King <sup>3)</sup> berechnet:

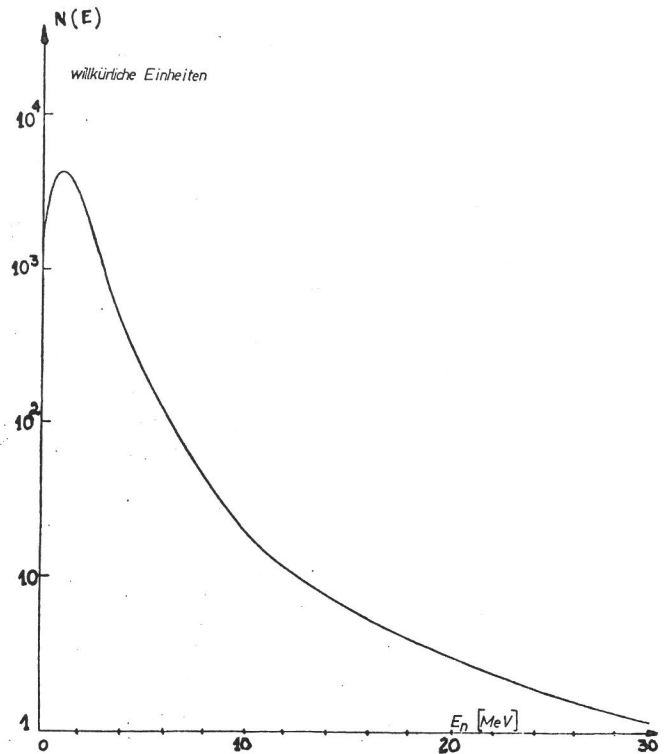
$$N(E) = 1,05 \cdot N_0 \cdot E \cdot \exp(-1,25E) + 0,26E^{1/2} \exp(-0,775E) \quad \text{für } E < 3 \text{ MeV (1)}$$

$$N(E) = 0,53 \cdot N_0 \cdot E^{-2,5} + 0,26E^{1/2} \exp(-0,775E) \quad \text{für } E > 3 \text{ MeV (2)}$$

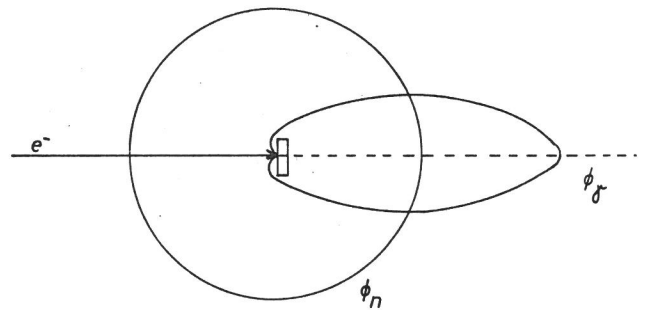
Es setzt sich aus zwei Anteilen zusammen, den Photoneutronen (1. Summand) und den Spaltneutronen (2. Summand). Der Anteil der Spaltneutronen an der gesamten Ausbeute beträgt ungefähr 1/3. Ein Spektrum, welches mit 30 MeV-Elektronen aus Natur-Uran erzeugt wurde, ist in Bild 4 wiedergegeben.

Die Winkelverteilung der Spaltneutronen ist isotrop. Die Verteilung der Photoneutronen hat dagegen bei 90° zur Strahlrichtung ein schwaches Maximum.

Für die Praxis der Aktivierungsanalyse bedeutet das, daß die Bestrahlungsposition für Neutronen neben dem Uran-Target stehen sollte, während für  $\gamma$ -Bestrahlungen der beste Platz vor dem Pt- oder W-Target ist (Bild 5).



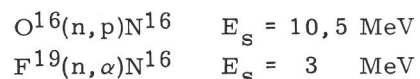
**Bild 4**  
Energiespektrum der schnellen Neutronen eines Natur-Uran-Targets [King, J. D.: Report No. 6, Saskatchewan linear accelerator]



**Bild 5**  
Winkelverteilungen des Neutronen- und  $\gamma$ -Feldes eines Schwermetalltargets

### 3.3 Aktivierungsanalyse mit schnellen Neutronen

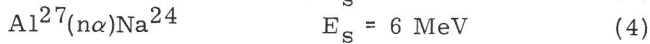
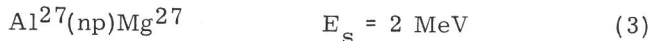
Die Aktivierungsanalyse mit schnellen Neutronen ist unter zwei Gesichtspunkten für die Praxis von Interesse: erstens wegen der geringen Absorptionsquerschnitte für schnelle Neutronen bei der zerstörungsfreien Analyse von Stoffgemischen aus mehreren Elementen, z. B. Bestimmung der Legierungsbestandteile antiker Goldmünzen <sup>4)</sup>, zweitens wegen der Möglichkeit variabler Energie zur Ausschaltung von Interferenzen. Bekanntestes Beispiel dafür sind die Reaktionen:



welche beide dasselbe Nuklid  $N^{16}$  ergeben. Bei der Aktivierung mit 14 MeV-Neutronen läßt sich die Interferenz nicht vermeiden. Mit den Neutronen variabler Energie, die mit einem Elektronenlinearbeschleuniger erzeugt werden, kann man jedoch F in Gegenwart von O störungslos bestimm-

men. Im allgemeinen läßt sich sagen, daß Interferenzen immer dann ausgeschaltet werden können, wenn die Schwellenergien konkurrierender Reaktionen sich um mehrere MeV unterscheiden.

Die wenigen interessanten Fälle sind von Steele<sup>5)</sup> zusammengestellt worden. Die Diskriminierung ist umso schärfer, d.h. die Schwellenergien dürfen umso dichter zusammen liegen, je besser das Neutronenspektrum monochromatisch ist. Da jedoch das Spektrum der Photoneutronen dem der Photonen sehr ähnlich ist, (Bild 4,6) kann man monoenergetische Neutronen mit einem Elektronenlinearbeschleuniger grundsätzlich nicht erzeugen. Das wenigste, was man tun kann, ist, die Maximalenergie der Neutronen festzulegen, indem man das Target mit monoenergetischen Elektronen beschießt. Die Energieselektion wird üblicherweise mit einem Ablenkmagneten durchgeführt. Durch Neutronenproduktion im abgelenkten Elektronenstrahl kann man außerdem den Anteil der hochenergetischen Neutronen leicht erhöhen, die Gesamtausbeute ist natürlich geringer als im direkten Strahl. Wilkniss<sup>6)</sup> hat Neutronenflüsse eines Ta-Targets mit zwei Schwellenergiereaktionen gemessen:



Er fand bei einem dünnen Ta-Target ( $9,76 \text{ g/cm}^2$ ) eine nahezu isotrope Neutronenverteilung mit einem Anteil "schneller" Neutronen ( $E_n > 6 \text{ MeV}$ ) von 10 %. An einem dicken W-Target ( $56 \text{ g/cm}^2$ ) war die Neutronenintensität in Rückwärtsrichtung

( $\varphi > 90^\circ$ ) 2,5 mal höher als in Strahlrichtung. Der Anteil der "schnellen" Neutronen ( $E_n > 6 \text{ MeV}$ ) betrug nur 7 % an der Gesamtausbeute. Beide Messungen wurden mit 22 MeV Elektronenenergie durchgeführt.

In der Tabelle 2 sind für einige Kernreaktionen die Aktivitäten nach Bestrahlung des dicken W-Targets mit Photoneutronen bei 35 MeV Elektronenenergie angegeben. Die mit der Reaktion (3) gemessene Flußdichte  $\Phi_n$  ( $E > 2 \text{ MeV}$ ) betrug  $4 \cdot 10^8 \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$ . Die Bestrahlungsposition befand sich einige cm vom Target entfernt. Der Strahlstrom betrug  $145 \mu\text{A}$ . Durch günstige Targetkonstruktion dürfte sich hier eine Erhöhung der Flußdichte bis auf  $10^{10} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$  erreichen lassen.

No.	Element	Reaction	$E_\gamma$ -photopeak, MeV	(cpm)	Detector
1	O	$^{16}\text{O}(\text{n,p})^{16}\text{N}$	5.0-7.0	$6 \times 10^4$	$5' \times 6' \text{ NaI/Tl}$
2	F	$^{19}\text{F}(\text{n},\alpha)^{16}\text{N}$	5.0-7.0	$3 \times 10^4$	$5' \times 6' \text{ NaI/Tl}$
3	Mg	$^{24}\text{Mg}(\text{n},\gamma)^{24}\text{Mg}$	0.83	$2 \times 10^4$	$5' \times 6' \text{ NaI/Tl}$
4	Mg	$^{24}\text{Mg}(\text{n},\text{p})^{24}\text{Na}$	2.75	$8 \times 10^4$	$5' \times 6' \text{ NaI/Tl}$
5	Al	$^{27}\text{Al}(\text{n},\gamma)^{27}\text{Al}$	1.78	$4 \times 10^4$	$3' \times 3' \text{ NaI/Tl}$
6	Al	$^{27}\text{Al}(\text{n},\text{p})^{27}\text{Mg}$	0.83	$1 \times 10^4$	$3' \times 3' \text{ NaI/Tl}$
7	Al	$^{27}\text{Al}(\text{n},\alpha)^{24}\text{Na}$	2.75	$3 \times 10^4$	$3' \times 3' \text{ NaI/Tl}$
8	P	$^{31}\text{P}(\text{n},\alpha)^{28}\text{Al}$	1.78	$3 \times 10^4$	$5' \times 6' \text{ NaI/Tl}$
9	Ti	$^{48}\text{Ti}(\text{n,p})^{48}\text{Sc}$	0.178	$3 \times 10^4$	Ge-Li

Tabelle 2

Photopeakzählraten am Ende der Bestrahlungszeit [nach Wilkniss<sup>6)</sup>]

Bestrahlungszeit = 1 Halbwertszeit;  $m = 1 \text{ g}$ ;  $E_{m,\text{a,x}} = 35 \text{ MeV}$ ;  
 $I = 145 \mu\text{A}$ ;  $\Phi_n (E > 2 \text{ MeV}) = 4 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$  in der Bestrahlungsposition

#### 4. Photonenproduktion

##### 4.1 Einige Aspekte der Photonenproduktion durch Abbremsen energiereicher Elektronen

Beim Durchgang durch Materie erleiden die Elektronen der Energie  $E$  Energieverluste durch zwei Prozesse: durch Anregung und Ionisation der Atome bzw. Moleküle und durch Erzeugung von Bremsstrahlung im Feld eines Atomkerns der Ordnungszahl  $Z$ . Der differentielle Energieverlust  $-\left(\frac{dE}{dx}\right)$  wird zweckmäßigerweise in MeV/cm gemessen. Für die beiden genannten Prozesse gelten die folgenden Abhängigkeiten:

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{ion}} = \frac{2\pi e^4 n Z}{m_0 v^2} \cdot \left[ \ln \frac{E(E+m_0 c^2)^2}{2 I^2 m_0 c^2} \cdot \beta^2 + (1-\beta^2) \right. \\ \left. - (2\sqrt{1-\beta^2} - 1 + \beta^2) \ln 2 + 1/8 (1-\sqrt{1-\beta^2})^2 \right] \text{MeV/cm} \quad (5)$$

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{rad}} = \frac{n r_0^2 Z^2}{136} (E+m_0 c^2) \left[ 4 \ln \frac{2(E+m_0 c^2)}{m_0 c^2} - 4/3 \right] \text{MeV/cm} \quad (6)$$

Hierin bedeuten:

$E$  = kinetische Energie der Elektronen

$n$  = Dichte der abbremsenden Atome

$Z$  = Ordnungszahl

$I$  = mittleres Ionisationspotential

$\beta$  =  $v/c$

$r_0$  = klassischer Elektronenradius =  $e^2/m_0 c^2$

Ein Vergleich der beiden Bremsprozesse führt näherungsweise zu folgender Formel

$$\frac{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{rad}}}{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{ion}}} \approx \frac{(E+m_0 c^2) \cdot Z}{1600 m_0 c^2} \quad (7)$$

die besagt, daß das Verhältnis sich proportional mit  $E$  und  $Z$  zugunsten der Bremsstrahlung verändert. Als kritische Energie, bei der die Energieverluste durch beide Prozesse gleich groß sind, ergibt sich

$$E_{\text{krit}} \approx \left( \frac{800}{Z} - 0,5 \right) \text{MeV} \quad (8)$$

Genauere Werte für einige Elemente sind in der folgenden Tabelle 3 zusammengestellt. Ohne Berücksichtigung der Diffusion der Elektronen im Target ergibt sich als Reichweite für Elektronen der Energie  $E_0$

$$R = \int_{E_0}^0 \frac{dE}{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{ion}} + \left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{rad}}} \quad (9)$$

Target	Z	$E_c$ [MeV]
H	1	340
He	2	220
C	6	103
Al	13	47
Ar	18	34,5
Fe	26	24
Cu	29	21,5
Pb	82	6,9

**Tabelle 3**  
Kritische Energien für einige Elemente

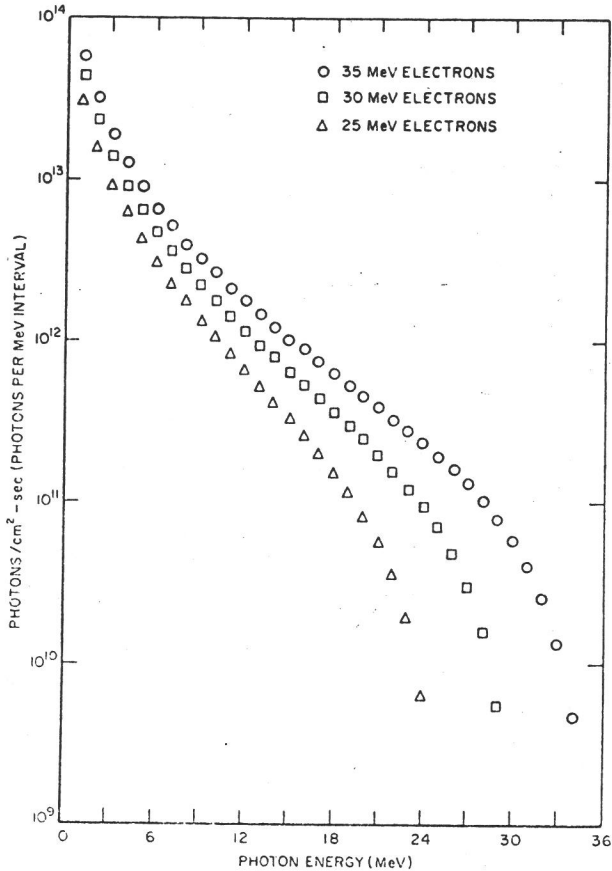
Die Theorie der Bremsstrahlung wurde von Bethe und Heitler begründet. Seitdem gibt es zahlreiche Veröffentlichungen, in denen die Spektren und Winkelverteilungen der Bremsstrahlung für verschiedene Fälle berechnet wurden (dünne und dicke Targets, Abschirmung der Kernladung durch die Elektronenhülle usw.). Der totale Wirkungsquerschnitt setzt sich jedenfalls - ebenso wie der differentielle Energieverlust der Elektronen - aus zwei Summanden zusammen.

$$\sigma_{\text{total}} = \sigma_0 \cdot Z \cdot (Z+n) \quad (10)$$

Dabei gilt der erste Summand für die Strahlungserzeugung im Kernfeld ( $\sim Z^2$ ) der zweite für das Feld der Hüllenelektronen ( $\sim Z$ );  $n$  ist eine sehr schwache Funktion von  $Z$ . Sie läuft von 1,04 bis 0,88 für  $Z = 12$  bis 82. Photonenspektren für drei verschiedene Elektronenenergien sind in Bild 6 wiedergegeben. Die Winkelverteilung der Bremsstrahlung hat eine stark ausgeprägte Keule in Vorwärtsrichtung, deren Öffnungswinkel umso schmaler ist, je höher die Photonenenergie ist.

## 4.2 Bremsstrahlungstarget

Für das Bremsstrahlungstarget folgt aus der Formel (10) des totalen Wirkungsquerschnittes die Forderung einer möglichst hohen Ordnungszahl des Targetmaterials. Zusätzliche Forderungen sind hohe thermische Belastbarkeit, d. h. hoher Schmelzpunkt und gute Wärmeleitfähigkeit, chemische Resistenz gegen Korrosion, möglichst geringe Aktivierung durch Photonen und schnelle Neutronen. In der Tabelle 4 sind die wichtigsten Parameter der infrage kommenden Schwermetalle zusammengestellt.



**Bild 6**  
Berechneter Photonenfluß für verschiedene Elektronenenergien bei 100  $\mu$ A mittlerem Strahlstrom [nach Lutz<sup>10)</sup>] Parameter gelten auch für Tabelle 7

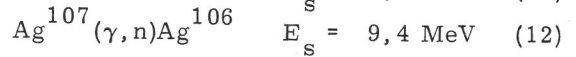
Targetdicke 0,6 cm      Probenlänge 3 cm  
Probedurchmesser 1 cm      Entfernung Target-Probe 3 cm

	Z	T <sub>m</sub> [°C]	$\kappa$ [ $\frac{\text{cal}}{\text{cm sec grad}}$ ]	Kernreaktion ( $\gamma, n$ )	T <sub>1/2</sub>
Ta	73	2996	0,13	Ta <sup>181</sup> ( $\gamma, n$ ) Ta <sup>180m</sup>	8,1 h
W	74	3370	0,4	W <sup>186</sup> ( $\gamma, n$ ) W <sup>185</sup> W <sup>182</sup> ( $\gamma, n$ ) W <sup>181</sup>	74 d 126 d
Pt	78	1773	0,17	Pt <sup>198</sup> ( $\gamma, n$ ) Pt <sup>197</sup> Pt <sup>194</sup> ( $\gamma, n$ ) Pt <sup>193m</sup>	18 h 4,4 d
Au	79	1063	0,7	Au <sup>197</sup> ( $\gamma, n$ ) Au <sup>196m</sup> Au <sup>197</sup> ( $\gamma, n$ ) Au <sup>196</sup>	9,5 h 6,1 d
U	92	1133	0,07	U <sup>238</sup> ( $\gamma, n$ ) U <sup>237</sup>	6,75 d

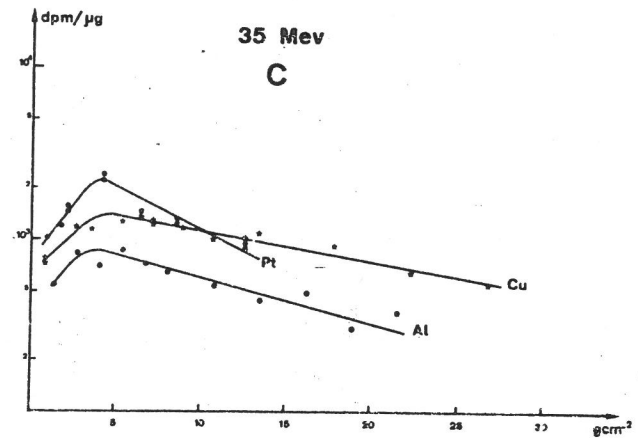
**Tabelle 4**  
Wichtige Eigenschaften verschiedener Targetmaterialien

Von Engelmann<sup>9)</sup> wurden ausführliche Versuche über die optimale Dicke verschiedener Targetmaterialien, sowie über die radiale und axiale Verteilung der Photonenflußdichte durchgeführt.

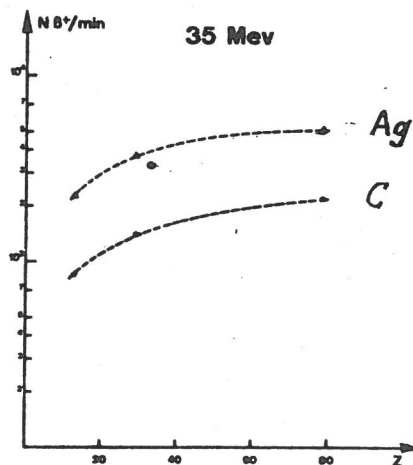
Es wurde jeweils die Aktivität von zwei Monitoren mit sehr unterschiedlichen Energieschwellen gemessen, und zwar



Die Ergebnisse lassen sich folgendermaßen zusammenfassen: Es existiert eine optimale Dicke, die zu maximaler Aktivierung führt, darüber nimmt die Aktivierung exponentiell ab infolge der Absorption der Photonen im Targetmaterial (Bild 7). Die optimale Dicke scheint von Z unabhängig zu sein; sie beträgt  $(4 \pm 0,5) \text{ g/cm}^2$  für Al, Cu, Pt bei 35 MeV. Trägt man die Aktivitäten bei optimaler Targetdicke als Funktion von Z auf, so ergeben sich die Kurven von Bild 8. Sie zeigen, daß wenigstens im Energiebereich der Riesenresonanzen der Photonenfluß wesentlich schwächer als quadratisch von Z abhängt, wie man es nach der Formel (19) eigentlich erwarten müßte.



**Bild 7**  
Abhängigkeit der Aktivierung des Kohlenstoffs von der Dicke verschiedener Targetmaterialien bei 35 MeV [nach Engelmann<sup>9)</sup>]



**Bild 8**  
Abhängigkeit der Aktivierung von Kohlenstoff und Silber von der Ordnungszahl des Targetmaterials bei 35 MeV [nach Engelmann<sup>9)</sup>]

Vor allem wegen der Korrosionsbeständigkeit und wegen des relativ hohen Schmelzpunktes hat man sich in Saclay für Pt als Targetmaterial entschieden. Für dieses Metall wurde auch die optimale Targetdicke als Funktion der Elektronenenergie gemessen<sup>9)</sup> (Bild 9).

Aufgrund der relativ starken Abhängigkeit der optimalen Dicke von der Elektronenenergie hat man in Saclay einen Targetwechsler mit sechs Positionen gebaut, um bei jeder Energie zwischen 25 und 45 MeV mit optimaler Targetdicke Bremsstrahlung erzeugen zu können. Eine der sechs Positionen ist mit einer Quarzscheibe besetzt, deren Fluoreszenzleuchten bei der Zentrierung des Elektronenstrahls mit einer Fernsehkamera beobachtbar ist. Der Targetwechsler wird mit einem Seilzug bedient, so daß man die Targets auswechseln kann, ohne den Beschleunigerraum betreten zu müssen.

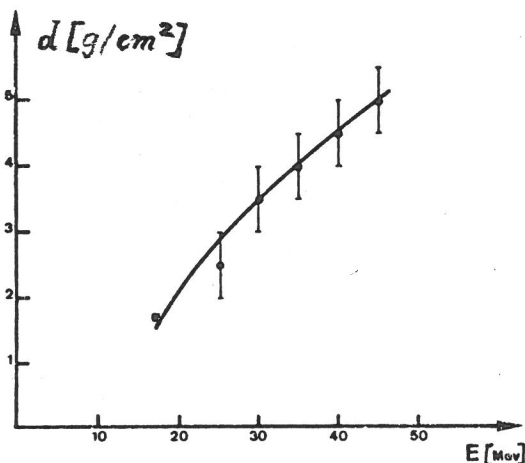


Bild 9  
Optimale Targetdicke von Pt bei variabler Elektronenenergie [nach Engelmann<sup>9)</sup>]

### 4.3 Aktivierungsanalyse mit energiereichen Photonen

Die beiden großen Pluspunkte der Neutronenaktivierungsanalyse - sehr hohe Nachweisempfindlichkeit (in vielen Fällen besser als  $10^{-8}$  g (Tab. 5) und die Möglichkeit, Kontaminationen des Analysengutes nach der Bestrahlung zu entfernen - gelten im Falle der Aktivierungsanalyse mit energiereichen Photonen vor allem auch für die leichten Elemente, die sich mit Neutronen nur sehr gering aktivieren lassen. Ein weiterer Vorteil gegenüber thermischen Neutronen ist der wesentlich geringere Absorptionsquerschnitt (Tab. 6), so daß man die so unangenehme Selbstabschirmung praktisch vernachlässigen kann.

Im Energiebereich von 15 bis 35 MeV werden fast ausschließlich  $(\gamma, n)$  - Prozesse ausgelöst. Die wichtigste Eigenschaft aller Photonenprozesse ist die sehr unterschiedliche Schwellenenergie  $E_s$ , unterhalb der keine Reaktion stattfinden kann. Aus Energie- und Impulssatz folgt für die Reaktion

$$M(\gamma, n)M' \quad (13)$$

Energie [MeV]	$O^{16}(\gamma, n)O^{15}$ $T_{1/2} 2,1 \text{ min}$	$N^{14}(\gamma, n)N^{13}$ $T_{1/2} 10 \text{ min}$	$C^{12}(\gamma, n)C^{11}$ $T_{1/2} 20,3 \text{ min}$	$F^{19}(\gamma, n)F^{18}$ $T_{1/2} 1,7 \text{ h}$
30	$0,05 \cdot 10^{-6} \text{ g}$	$0,04 \cdot 10^{-6} \text{ g}$	$0,02 \cdot 10^{-6} \text{ g}$	$0,01 \cdot 10^{-6} \text{ g}$
40	0,02 -	0,01 -	0,005 -	0,002 -
50	0,007 -	0,005 -	0,002 -	0,001 -

Tabelle 5  
Nachweisgrenze für die Elemente C, N, O, F [nach Engelmann<sup>9)</sup>]

$E_\gamma$ [MeV]	Al	Cu	Pt
15	11,7	2,4	0,60
20	11,8	2,3	0,54
30	11,7	2,1	0,47
40	11,4	2,0	0,44

Tabelle 6  
Halbwertdicken von Al, Cu, Pt in cm

bei der Schwellenenergie  $E_s$

$$E_s + Q = \frac{1}{2} M' v^2 + \frac{1}{2} m v^2 \quad (14)$$

$$\frac{E_s}{c} = M' v + m v \quad (15)$$

$$E_s = -Q + \frac{E_s^2}{2(m+M)c^2} \quad (16)$$

$v$  = Geschwindigkeit des Neutrons ( $m$ ) =  
Geschwindigkeit des Rückstoßkerns ( $M'$ ) bei der Energie  $E_s$

Aus der Formel (16) folgt näherungsweise:

$$E_s \approx -Q \quad (17)$$

Die exakte Lösung ist

$$E_s = (m+M)c^2 \left[ 1 - \sqrt{1 + \frac{2Q}{(m+M)c^2}} \right] \quad (18)$$

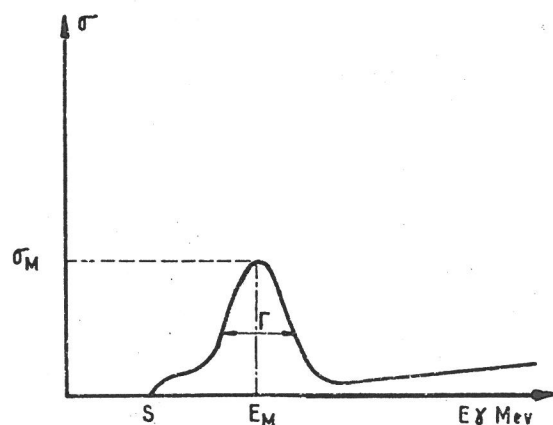


Bild 10  
Prinzipieller Verlauf der Anregungsfunktion von  $(\gamma, n)$ -Reaktionen

$S$  = Schwellenenergie  
 $E_M$  = Maximum der Resonanz  
 $\Gamma$  = Halbwertbreite der Resonanz

Disintegrations per second (per microgram of element)

Element	Reaction	Product half-life	10-Minute irradiation			4-Hour irradiation		
			25 MeV	30 MeV	35 MeV	25 MeV	30 MeV	35 MeV
Carbon	<sup>12</sup> C(γ,n) <sup>11</sup> C	20.5m	2 × 10 <sup>1</sup>	7 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	6 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>	5 × 10 <sup>2</sup>
Nitrogen	<sup>14</sup> N(γ,n) <sup>13</sup> N	10.0m	7 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>	4 × 10 <sup>2</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	4 × 10 <sup>2</sup>	8 × 10 <sup>2</sup>
Oxygen	<sup>16</sup> O(γ,n) <sup>15</sup> O	2.1m	1 × 10 <sup>2</sup>	3 × 10 <sup>2</sup>	6 × 10 <sup>2</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	3 × 10 <sup>2</sup>	6 × 10 <sup>2</sup>
Fluorine	<sup>19</sup> F(γ,n) <sup>18</sup> F	1.87h	3	8	1 × 10 <sup>1</sup>	4 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>
Sodium	<sup>23</sup> Na(γ,n) <sup>22</sup> Na	2.6y	9 × 10 <sup>-4</sup>	2 × 10 <sup>-3</sup>	4 × 10 <sup>-3</sup>	2 × 10 <sup>-2</sup>	5 × 10 <sup>-2</sup>	9 × 10 <sup>-2</sup>
Magnesium	<sup>25</sup> Mg(γ,p) <sup>24</sup> Na	15h	1 × 10 <sup>-1</sup>	4 × 10 <sup>-1</sup>	7 × 10 <sup>-1</sup>	3	9	2 × 10 <sup>1</sup>
Magnesium	<sup>26</sup> Mg(γ,p) <sup>25</sup> Na	60s	1 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>	7 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>	7 × 10 <sup>1</sup>
Silicon	<sup>29</sup> Si(γ,p) <sup>28</sup> Al	2.3m	1 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>
Silicon	<sup>30</sup> Si(γ,p) <sup>29</sup> Al	6.6m	3	9	2 × 10 <sup>1</sup>	4	1 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>
Phosphorus	<sup>31</sup> P(γ,n) <sup>30</sup> P	2.5m	1 × 10 <sup>2</sup>	3 × 10 <sup>2</sup>	6 × 10 <sup>2</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	4 × 10 <sup>2</sup>	6 × 10 <sup>2</sup>
Sulfur	<sup>32</sup> S(γ,n) <sup>31</sup> S	2.6s	7 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>	4 × 10 <sup>2</sup>	7 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>	4 × 10 <sup>2</sup>
Chlorine	<sup>35</sup> Cl(γ,n) <sup>34</sup> Cl	32.0m	2 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>	8 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>	4 × 10 <sup>2</sup>
Argon	<sup>40</sup> Ar(γ,p) <sup>39</sup> Cl	55m	1 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	4 × 10 <sup>2</sup>	9 × 10 <sup>2</sup>
Potassium	<sup>39</sup> K(γ,n) <sup>38</sup> K	7.7m	5 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>	9 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>	4 × 10 <sup>2</sup>
Titanium	<sup>46</sup> Ti(γ,n) <sup>45</sup> Ti	3.1h	5 × 10 <sup>-1</sup>	1	2	8	2 × 10 <sup>1</sup>	4 × 10 <sup>1</sup>
Titanium	<sup>48</sup> Ti(γ,p) <sup>47</sup> Sc	3.4d	8 × 10 <sup>-2</sup>	2 × 10 <sup>-1</sup>	5 × 10 <sup>-1</sup>	2	6	1 × 10 <sup>1</sup>
Chromium	<sup>50</sup> Cr(γ,n) <sup>49</sup> Cr	42m	2	4	8	1 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>
Chromium	<sup>53</sup> Cr(γ,p) <sup>52</sup> V	3.77m	8	2 × 10 <sup>1</sup>	4 × 10 <sup>1</sup>	9	2 × 10 <sup>1</sup>	4 × 10 <sup>1</sup>
Manganese	<sup>55</sup> Mn(γ,n) <sup>54</sup> Mn	303d	1 × 10 <sup>-2</sup>	2 × 10 <sup>-2</sup>	4 × 10 <sup>-2</sup>	2 × 10 <sup>-1</sup>	6 × 10 <sup>-1</sup>	1
Iron	<sup>54</sup> Fe(γ,n) <sup>53</sup> Fe	8.5m	1 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>	9 × 10 <sup>1</sup>
Cobalt	<sup>59</sup> Co(γ,n) <sup>58</sup> Co	71d	3 × 10 <sup>-2</sup>	7 × 10 <sup>-2</sup>	1 × 10 <sup>-1</sup>	8 × 10 <sup>-1</sup>	2	3
Nickel	<sup>58</sup> Ni(γ,n) <sup>57</sup> Ni	36h	3 × 10 <sup>-1</sup>	7 × 10 <sup>-1</sup>	1	7	2 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>
Copper	<sup>63</sup> Cu(γ,n) <sup>62</sup> Cu	9.9m	2 × 10 <sup>2</sup>	5 × 10 <sup>2</sup>	9 × 10 <sup>2</sup>	5 × 10 <sup>2</sup>	1 × 10 <sup>3</sup>	2 × 10 <sup>3</sup>
Copper	<sup>65</sup> Cu(γ,n) <sup>64</sup> Cu	12.9h	2	5	9	5 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>
Zinc	<sup>64</sup> Zn(γ,n) <sup>63</sup> Zn	38m	5 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>	3 × 10 <sup>2</sup>	7 × 10 <sup>2</sup>	1 × 10 <sup>3</sup>
Germanium	<sup>70</sup> Ge(γ,n) <sup>69</sup> Ge	82m	7	2 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>	7 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>	3 × 10 <sup>2</sup>
Germanium	<sup>70</sup> Ge(γ,n) <sup>69</sup> Ge	40h	6 × 10 <sup>-1</sup>	1	2	1 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>
Arsenic	<sup>75</sup> As(γ,n) <sup>74</sup> As	18d	2 × 10 <sup>-1</sup>	4 × 10 <sup>-1</sup>	6 × 10 <sup>-1</sup>	4	8	1 × 10 <sup>1</sup>
Bromine	<sup>79</sup> Br(γ,n) <sup>78</sup> Br	6.5m	5 × 10 <sup>2</sup>	1 × 10 <sup>3</sup>	2 × 10 <sup>3</sup>	8 × 10 <sup>2</sup>	2 × 10 <sup>3</sup>	3 × 10 <sup>3</sup>
Bromine	<sup>81</sup> Br(γ,n) <sup>80m</sup> Br	4.5h	3	6	1 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>
Rubidium	<sup>87</sup> Rb(γ,n) <sup>86</sup> Rb	18.7d	8 × 10 <sup>-2</sup>	2 × 10 <sup>-1</sup>	3 × 10 <sup>-1</sup>	2	4	7
Strontium	<sup>86</sup> Sr(γ,n) <sup>85</sup> Sr	64d	7 × 10 <sup>-3</sup>	1 × 10 <sup>-2</sup>	2 × 10 <sup>-2</sup>	2 × 10 <sup>-1</sup>	3 × 10 <sup>-1</sup>	6 × 10 <sup>-1</sup>
Yttrium	<sup>89</sup> Y(γ,n) <sup>88</sup> Y	108d	4 × 10 <sup>-2</sup>	9 × 10 <sup>-2</sup>	1 × 10 <sup>-1</sup>	1	2	4
Zirconium	<sup>90</sup> Zr(γ,n) <sup>89</sup> Zr	78.4h	7 × 10 <sup>-1</sup>	2	3	2 × 10 <sup>1</sup>	4 × 10 <sup>1</sup>	7 × 10 <sup>1</sup>
Niobium	<sup>93</sup> Nb(γ,n) <sup>92</sup> Nb	10.1d	6 × 10 <sup>-1</sup>	1	2	1 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>
Molybdenum	<sup>92</sup> Mo(γ,n) <sup>91</sup> Mo	15.5m	2 × 10 <sup>1</sup>	6 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	6 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>	3 × 10 <sup>2</sup>
Molybdenum	<sup>100</sup> Mo(γ,n) <sup>99</sup> Mo	66h	2 × 10 <sup>-1</sup>	5 × 10 <sup>-1</sup>	7 × 10 <sup>-1</sup>	5	1 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>1</sup>
Ruthenium	<sup>96</sup> Ru(γ,n) <sup>95</sup> Ru	99m	4	9	2 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>
Ruthenium	<sup>104</sup> Ru(γ,n) <sup>103</sup> Ru	40d	3 × 10 <sup>-2</sup>	6 × 10 <sup>-2</sup>	1 × 10 <sup>-1</sup>	7 × 10 <sup>-1</sup>	2	3
Rhodium	<sup>103</sup> Rh(γ,n) <sup>102</sup> Rh	206d	3 × 10 <sup>-2</sup>	5 × 10 <sup>-2</sup>	9 × 10 <sup>-2</sup>	6 × 10 <sup>-1</sup>	1	2
Palladium	<sup>104</sup> Pd(γ,n) <sup>103</sup> Pd	17d	4 × 10 <sup>-2</sup>	9 × 10 <sup>-2</sup>	1 × 10 <sup>-1</sup>	1	2	3
Silver	<sup>107</sup> Ag(γ,n) <sup>106</sup> Ag	24m	2 × 10 <sup>2</sup>	4 × 10 <sup>2</sup>	6 × 10 <sup>2</sup>	7 × 10 <sup>2</sup>	1 × 10 <sup>3</sup>	2 × 10 <sup>3</sup>
Cadmium	<sup>113</sup> Cd(γ,p) <sup>112</sup> Ag	3.2h	8 × 10 <sup>-2</sup>	2 × 10 <sup>-1</sup>	4 × 10 <sup>-1</sup>	1	4	6
Cadmium	<sup>114</sup> Cd(γ,p) <sup>113</sup> Ag	5.3h	1 × 10 <sup>-1</sup>	3 × 10 <sup>-1</sup>	5 × 10 <sup>-1</sup>	2	5	9
Indium	<sup>115</sup> In(γ,n) <sup>114</sup> In	50d	2 × 10 <sup>-1</sup>	4 × 10 <sup>-1</sup>	6 × 10 <sup>-1</sup>	5	9	1 × 10 <sup>1</sup>
Indium	<sup>115</sup> In(γ,γ' <sup>115m</sup> In)	4.4h	2	4	5	4 × 10 <sup>1</sup>	7 × 10 <sup>1</sup>	9 × 10 <sup>1</sup>
Tin	<sup>112</sup> Sn(γ,n) <sup>111</sup> Sn	35m	3	6	9	2 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>
Tin	<sup>124</sup> Sn(γ,n) <sup>123</sup> Sn	125d	3 × 10 <sup>-3</sup>	7 × 10 <sup>-3</sup>	1 × 10 <sup>-2</sup>	8 × 10 <sup>-2</sup>	2 × 10 <sup>-1</sup>	3 × 10 <sup>-1</sup>
Antimony	<sup>121</sup> Sb(γ,n) <sup>120m</sup> Sb	5.8d	6 × 10 <sup>-1</sup>	1	2	1 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>	4 × 10 <sup>1</sup>
Antimony	<sup>123</sup> Sb(γ,n) <sup>122</sup> Sb	2.8d	2	3	5	4 × 10 <sup>1</sup>	8 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>
Iodine	<sup>127</sup> I(γ,n) <sup>126</sup> I	13.2d	8 × 10 <sup>-1</sup>	2	3	2 × 10 <sup>1</sup>	4 × 10 <sup>1</sup>	6 × 10 <sup>1</sup>
Cesium	<sup>133</sup> Cs(γ,n) <sup>132</sup> Cs	6.58d	1	3	4	3 × 10 <sup>1</sup>	6 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>
Cerium	<sup>140</sup> Ce(γ,n) <sup>139</sup> Ce	140d	6 × 10 <sup>-2</sup>	1 × 10 <sup>-1</sup>	2 × 10 <sup>-1</sup>	1	3	4
Praseodymium	<sup>141</sup> Pr(γ,n) <sup>140</sup> Pr	3.4m	1 × 10 <sup>3</sup>	3 × 10 <sup>3</sup>	4 × 10 <sup>3</sup>	2 × 10 <sup>3</sup>	3 × 10 <sup>3</sup>	5 × 10 <sup>3</sup>
Neodymium	<sup>142</sup> Nd(γ,n) <sup>141</sup> Nd	2.5h	2 × 10 <sup>1</sup>	4 × 10 <sup>1</sup>	6 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>2</sup>	5 × 10 <sup>2</sup>	8 × 10 <sup>2</sup>
Neodymium	<sup>150</sup> Nd(γ,n) <sup>149</sup> Nd	1.8h	8	1 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>	3 × 10 <sup>2</sup>
Samarium	<sup>144</sup> Sm(γ,n) <sup>143</sup> Sm	91m	2 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>	8 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>	9 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>
Samarium	<sup>154</sup> Sm(γ,n) <sup>153</sup> Sm	47h	1	2	3	2 × 10 <sup>1</sup>	5 × 10 <sup>1</sup>	7 × 10 <sup>1</sup>
Gadolinium	<sup>160</sup> Gd(γ,n) <sup>159</sup> Gd	18h	3	5	7	6 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>
Terbium	<sup>155</sup> Tb(γ,n) <sup>154</sup> Tb	150y	2 × 10 <sup>-4</sup>	3 × 10 <sup>-4</sup>	5 × 10 <sup>-4</sup>	4 × 10 <sup>-3</sup>	8 × 10 <sup>-3</sup>	1 × 10 <sup>-2</sup>
Dysprosium	<sup>156</sup> Dy(γ,n) <sup>155</sup> Dy	8.5h	2 × 10 <sup>-2</sup>	4 × 10 <sup>-2</sup>	7 × 10 <sup>-2</sup>	5 × 10 <sup>-1</sup>	9 × 10 <sup>-1</sup>	1
Holmium	<sup>163</sup> Ho(γ,n) <sup>162</sup> Ho	35m	3 × 10 <sup>2</sup>	6 × 10 <sup>2</sup>	1 × 10 <sup>3</sup>	2 × 10 <sup>2</sup>	4 × 10 <sup>2</sup>	6 × 10 <sup>2</sup>
Erbium	<sup>166</sup> Er(γ,n) <sup>165</sup> Er	10.4h	7	1 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	3 × 10 <sup>2</sup>	4 × 10 <sup>2</sup>
Thulium	<sup>169</sup> Tm(γ,n) <sup>168</sup> Tm	86d	1 × 10 <sup>-1</sup>	2 × 10 <sup>-1</sup>	3 × 10 <sup>-1</sup>	3	5	8
Ytterbium	<sup>168</sup> Yb(γ,n) <sup>167</sup> Yb	18m	1	2	3	3	5	8
Ytterbium	<sup>170</sup> Yb(γ,n) <sup>169</sup> Yb	4.2d	3 × 10 <sup>-1</sup>	6 × 10 <sup>-1</sup>	9 × 10 <sup>-1</sup>	8	1 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>1</sup>
Lutetium	<sup>175</sup> Lu(γ,n) <sup>174</sup> Lu	300d	1 × 10 <sup>-2</sup>	3 × 10 <sup>-2</sup>	4 × 10 <sup>-2</sup>	3 × 10 <sup>-1</sup>	6 × 10 <sup>-1</sup>	1
Tantalum	<sup>181</sup> Ta(γ,n) <sup>180m</sup> Ta	8.1h	4 × 10 <sup>1</sup>	7 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>	8 × 10 <sup>2</sup>	1 × 10 <sup>3</sup>	2 × 10 <sup>3</sup>
Tungsten	<sup>186</sup> W(γ,n) <sup>185</sup> W	74d	5 × 10 <sup>-2</sup>	9 × 10 <sup>-2</sup>	1 × 10 <sup>-1</sup>	1	2	3
Rhenium	<sup>187</sup> Re(γ,n) <sup>186</sup> Re	90h	2	4	6	5 × 10 <sup>1</sup>	9 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>
Osmium	<sup>192</sup> Os(γ,n) <sup>191</sup> Os	15d	3 × 10 <sup>-1</sup>	6 × 10 <sup>-1</sup>	1	8	1 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>1</sup>
Iridium	<sup>191</sup> Ir(γ,n) <sup>190</sup> Ir	12d	4 × 10 <sup>-1</sup>	7 × 10 <sup>-1</sup>	1	9	2 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>
Gold	<sup>197</sup> Au(γ,n) <sup>196</sup> Au	6.2d	2	4	6	5 × 10 <sup>1</sup>	9 × 10 <sup>1</sup>	1 × 10 <sup>2</sup>
Mercury	<sup>198</sup> Hg(γ,n) <sup>197</sup> Hg	65h	5 × 10 <sup>-1</sup>	9 × 10 <sup>-1</sup>	1	1 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>1</sup>	3 × 10 <sup>1</sup>
Thallium	<sup>203</sup> Tl(γ,n) <sup>202</sup> Tl	12d	3 × 10 <sup>-1</sup>	6 × 10 <sup>-1</sup>	9 × 10 <sup>-1</sup>	8	1 × 10 <sup>1</sup>	2 × 10 <sup>1</sup>
Lead	<sup>204</sup> Pb(γ,n) <sup>203</sup> Pb	52h	1 × 10 <sup>-1</sup>	2 × 10 <sup>-1</sup>	3 × 10 <sup>-1</sup>	2	4	6

Tabelle 7

Berechnete Nachweisempfindlichkeiten [nach Lutz<sup>10)</sup>; Parameter wie in Bild 6

Die Anregungsfunktion der ( $\gamma, n$ )-Reaktion wird durch die sog. Riesenresonanz charakterisiert (Bild 10), deren Maximum bei den leichten Elementen ungefähr bei  $E_M = 20$  MeV liegt. Die Halbwertbreite schwankt zwischen 5 und 8 MeV. G. J. Lutz<sup>10)</sup> hat mit folgenden Relationen

$$E_M = 80 \cdot A^{-1/3} \text{ MeV} \quad (19)$$

$$\int_{E_s}^E \sigma dE = \frac{0,06 \cdot N \cdot Z}{A} \cdot \text{MeV} \cdot \text{barn} \quad (20)$$

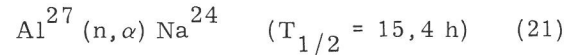
mit  $A$  = Atomgewicht  
 $N$  = Neutronenzahl  
 $Z$  = Ordnungszahl

die mit Bremsstrahlung verschiedener Energie induzierten Aktivitäten für 86 Isotope berechnet. Die in Tab. 7 wiedergegebenen Werte stimmen gut mit experimentellen Ausbeuten von Oka et al.<sup>11)</sup> überein.

Tab. 7  
 Bild 10

Da die zu aktivierende Probe möglichst dicht an das  $\gamma$ -Target herangebracht werden muß, müssen auf jeden Fall alle Elektronen im Target absorbiert werden. Anderenfalls würde die Probe zu stark aufgeheizt werden. Die optimale Dicke ist jedoch meistens geringer als die Dicke der totalen Elektronenabsorption. Normalerweise werden die durchtretenden Elektronen durch einen sog. Reinigungsmagneten aus dem  $\gamma$ -Strahl herausgelenkt. Diese Lösung bringt den großen Nachteil, daß der Abstand Target-Probe wenigstens die Länge des Magneten (ca. 50 cm) hat. Es wurde deshalb bereits vorgeschlagen<sup>9)</sup>, ein zusammengesetztes Target zu bauen, welches aus einer optimalen Dicke eines Schwermetalls besteht, ergänzt durch eine Schicht eines Metalls mit niedrigem  $Z$ , welche zwar alle Elektronen aber möglichst wenig  $\gamma$ -Strahlung absorbiert. Dieser Lösung kommt das von Vickers vorgeschlagene Target (W + Cu, gesintert) sehr nahe. Doch wird

keine totale Absorption der Elektronen garantiert. Außerdem wird im Cu eine sehr starke Aktivität aufgebaut. Al ist auf jeden Fall als Elektronenfänger zu bevorzugen, da es eines der wenigen Metalle ist, die durch Photonen nur sehr schwach aktiviert werden. Die stärkste Aktivität wird durch die gleichzeitig gebildeten Photoneutronen erzeugt über die Reaktion:



In Saclay hat sich gezeigt, daß es einfacher und sicherer ist, bei allen Energien das dickste Pt-Target zu benutzen, als das Target entsprechend Bild 9 mit der Energie zu wechseln. Für den Betrieb in der BAM empfiehlt sich daher die Konstruktion nur eines Targets, welches gerade dick genug ist, auch die energiereichsten Elektronen zu absorbieren. Denn die Aktivierung als Funktion der Targetdicke schwankt nach Bild 7 nur um ca. 50 % im Energiebereich von 10 - 35 MeV. Auch der Einbau einer Quarzscheibe zum Sichtbarmachen des Elektronenstrahls bei der Zentrierung ist nicht nötig, da man in Saclay die Erfahrung gemacht hat, daß ab ca. 20  $\mu\text{A}$  Strahlstrom der Elektronenstrahl auch direkt auf dem Pt-Target beobachtet werden kann (wahrscheinlich ist die Fernsehkamera stark infrarotempfindlich). Außerdem vereinfacht das Weglassen des Targetwechsels den Bau der Bestrahlungsposition, die mit dem Target eine mechanische Einheit bilden muß (möglichst kleiner Abstand, feste Geometrie). Weiterhin ist daran zu denken, aus wirtschaftlichen Gründen die gleichzeitig entstehenden schnellen Neutronen (vgl. Kap. 3.3) in einer zweiten um 90° gekippten Bestrahlungsposition nutzbar zu machen. Nach den Messungen von Wilkniss<sup>8)</sup>, z.B. beträgt die Bremsstrahlungsintensität relativ zum zentralen Strahl (0°) nur noch 0,1 % für 90° und 0,07 % für 135°, während der Neutronenfluß nahezu kugelsymmetrisch ist. Bei dieser Lösung muß man sich bewußt sein, daß ein optimal konstruiertes Uran-Target den Neutronenfluß im Verhältnis zu einem Pt-Target nur um einen Faktor 2 erhöhen würde.



### 5.1 Unterschied zur Aktivierung mit Photonen

Bei der Aktivierungsanalyse mit geladenen Teilchen muß man folgende wesentliche Unterschiede im Vergleich zur Aktivierung mit Neutronen oder Photonen beachten:

Durch Ionisationsverluste nimmt die Energie des aktivierenden Teilchens stetig mit größer werdender Eindringtiefe ab. Daraus folgt eine grundsätzlich inhomogene Aktivierung. Die spezifische Aktivität steht in direkter Korrelation mit der Anregungsfunktion  $\sigma = f(E)$  der betrachteten Kernreaktionen.

Das einfallende Teilchen muß eine Minimalenergie besitzen, um die Coulombsche Abstoßungskraft des zu aktivierenden Kernes zu überwinden. Trotzdem darf man den Tunneleffekt nicht vernachlässigen, der zur Folge hat, daß auch unterhalb der Coulombbarriere der Wirkungsquerschnitt nicht Null wird. Dieser Effekt ist besonders bei der Spurenanalyse zu betrachten, wo man sich für Aktivitätsverhältnisse interessiert, die größer als  $10^9$  sein können.

Der differentielle Energieverlust der Teilchen p, d, He3, He4 ist sehr groß. Das hat zur Folge, daß die gesamte Energie des einfallenden Strahles in einem sehr kleinen Volumen absorbiert wird. Die spezifische thermische Energie nimmt deshalb so hohe Werte an, daß folgende Phänomene auftreten können: Diffusion der erzeugten Radionuklide während der Bestrahlung und lokale bzw. totale Zerstörung durch Schmelzen oder Verdampfen.

### 5.2 Methoden zur Kalibrierung

Die Kalibrierung bei einer quantitativen Analyse bereitet wegen der grundsätzlich inhomogenen Aktivierung infolge des starken Energieverlustes der geladenen Teilchen große Schwierigkeiten. Eine ausführliche Übersicht über die verschiedenen möglichen Methoden der Kalibrierung findet sich bei Engelmann<sup>9)</sup>. Sie sollen hier aufgezählt werden, ohne auf die Vor- und Nachteile sowie die experimentellen Einzelheiten einzugehen:

absolute Methode,  
Methode des inneren Standards,

Methode des mittleren Wirkungsquerschnittes,  
Methode der äquivalenten Dicke,  
vergleichende Methode.

Nach den Erfahrungen der Arbeitsgruppe in Saclay hat sich die Methode der äquivalenten Dicke in der Praxis der Aktivierungsanalyse gut bewährt. Sie wurde deshalb bei allen durchgeführten Analysen angewendet.

### 5.3 Methode der äquivalenten Dicke

Diese Methode wurde von Engelmann seit 1964 entwickelt<sup>15)</sup>. Sie ist rein experimentell und impliziert den Einfluß des Energiespektrums der geladenen Teilchen auf die Aktivierung. Die grundsätzlich inhomogene Aktivierung einer Verunreinigung in einer Probe der Dicke  $d > R$  (Reichweite des geladenen Teilchens der Energie E in dem Material der Probe) wird durch die homogene Aktivierung einer äquivalenten Schicht der Dicke e ersetzt:

$$A = n \cdot \int_0^R \Phi(x) \cdot \sigma(x) \cdot dx = n \cdot \Phi_0 \cdot \sigma_0 \cdot e \quad (22)$$

Daraus folgt für die äquivalente Dicke

$$e = \frac{\int_0^R \sigma(x) \cdot dx}{\sigma_0} \quad (23)$$

wenn man  $\Phi(x) = \Phi_0$  voraussetzt. Das ist jedoch praktisch immer möglich, da die Wirkungsquerschnitte der Kernreaktionen mit geladenen Teilchen im mbarn-Bereich liegen.

Um eine Dosierung durchzuführen, legt man vor die Probe ein Standard der Dicke  $E \text{ g cm}^{-2}$  mit dem bekannten Gehalt  $n'$  Atome/g des gesuchten Elements. Der Standard soll so dünn sein, daß der Energieverlust der aktivierenden Teilchen vernachlässigt werden kann. Für die Aktivitäten in Probe und Standard gelten dann die folgenden Gleichungen

$$A_{\text{Probe}} = \Phi \cdot n \cdot \sigma_0 \cdot e \quad (24)$$

$$A_{\text{Standard}} = \Phi \cdot n' \cdot \sigma_0 \cdot E \quad (25)$$

mit  $\sigma$  = Wirkungsquerschnitt der für die Dosierung benutzten Kernreaktionen bei der Anfangsenergie  $E_0$  des aktivierenden Teilchens und  $\Phi$  = Zahl der geladenen Teilchen pro Sekunde. Aus den Gleichungen (24) und (25) folgt die Konzentration des gesuchten Elements n

$$n = \frac{A_{\text{Probe}}}{A_{\text{Standard}}} \cdot \frac{E}{e} \cdot n' \quad (26)$$

Mit dieser Methode vermeidet man die stets sehr ungenaue Flußmessung (bei geladenen Teilchen bereitet vor allem die Unterdrückung von Sekundärelektronen Schwierigkeit); außerdem braucht der Wirkungsquerschnitt  $\sigma_0$  nicht bekannt zu sein.

Zwei Schwierigkeiten der Methode sind noch zu diskutieren: die Bestimmung der äquivalenten Dicke und die Herstellung dünner Standards mit bekanntem Gehalt der leichten Elemente B, C, N, O, F. Um die Herstellung dünner Standards zu vermeiden, hat man sich entschieden, grundsätzlich dicke Standards zu benutzen ( $d > e$ ), die in einer separaten Bestrahlung bei sehr viel kleinerem Teilchenfluß aktiviert werden können. Für die Konzentration des gesuchten Elements ergibt sich dann

$$n = \frac{A_{\text{Probe}}/\Phi_1}{A_{\text{Standard}}/\Phi_2} \cdot \frac{e_2}{e_1} \cdot n' \quad (27)$$

Als Flußmonitore werden je nach Teilchenart Glimmer- oder Aluminiumfolien benutzt. So hat sich Glimmer für p, He<sup>3</sup>,  $\alpha$  und Aluminium für d bewährt (Tab. 8).

Teilchenart	Kernreaktion	Material	Dicke [mg/cm <sup>2</sup> ]
p	<sup>18</sup> O(p,n) <sup>18</sup> F	Glimmer	3 - 5
d	<sup>27</sup> Al(d, $\alpha$ p) <sup>24</sup> Na	Aluminium	6, 75
<sup>3</sup> He	<sup>16</sup> O( <sup>3</sup> He, p) <sup>8</sup> F	Glimmer	3 - 5
$\alpha$	<sup>16</sup> O( $\alpha$ , pn) <sup>18</sup> F	Glimmer	3 - 5

**Tabelle 8**  
Flußmonitore für Aktivierung mit geladenen Teilchen

Das Verhältnis  $e_2/e_1$  in Gl. (27) kann man durch  $R_2/R_1$  ersetzen. Nach Ricci und Hahn ist das Verhältnis  $\bar{\sigma}/\sigma_0$  für eine Kernreaktion unabhängig vom Matrixmaterial. Dabei ist  $\bar{\sigma}$  der über die Reichweite gemittelte Wirkungsquerschnitt

$$\bar{\sigma} = \frac{\int_0^R \sigma(x) dx}{\int_0^R dx} \quad (28)$$

aus (23) und (28) ergibt sich

$$\bar{\sigma}/\sigma_0 = e/R \quad (29)$$

Nach der Hypothese von Ricci und Hahn folgt aus (28) für zwei Materialien 1 und 2

$$e_1/e_2 = R_1/R_2 \quad (30)$$

d. h. man kann in Formel (26) das Verhältnis der äquivalenten Dicken durch das Verhältnis der Reichweiten ersetzen. Chevarier et. al. <sup>16)</sup> haben sogar zeigen können, daß auch im Falle einer Energieverschmierung durch Abschwächerfolien (energy straggling) die Beziehung (30) ihre Gültigkeit behält, wenn R die Reichweite für die wahrscheinlichste Energie der Verteilung ist. Die Reichweiten für p, d, t, He<sup>3</sup>,  $\alpha$  als Funktion von Energie und Ordnungszahl sind von Williamson et. al. <sup>17)</sup> tabelliert worden. Einige Werte sind in Tabelle 9 wiedergegeben.

Material	p 15 MeV	d 20 MeV	<sup>3</sup> He 20 MeV	$\alpha$ 40 MeV
Be	0,300	0,289	0,0525	0,145
H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	0,276	0,274	0,049	0,135
BeO		0,292		
C	0,286	0,276	0,0506	0,139
Al N	0,324	0,318	0,0586	0,160
Si O <sub>2</sub>	0,317		0,0567	0,156
Li F	0,318		0,0565	0,154
Al	0,344	0,338	0,0630	0,170
Cu	0,437	0,438	0,0837	0,220
Ag	0,522	0,532	0,103	0,267
Ta	0,647	0,672	0,133	0,348
U	0,732	0,767	0,153	0,383

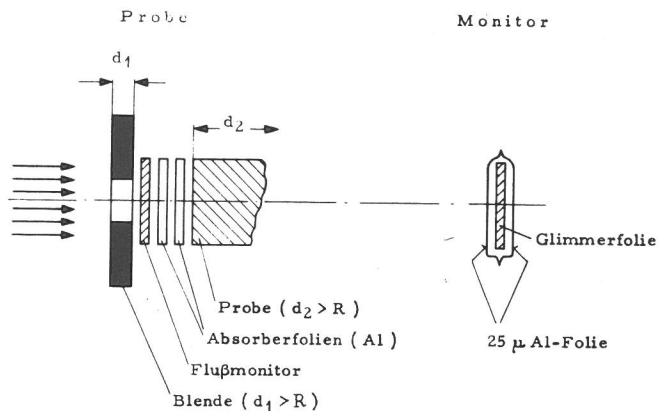
**Tabelle 9**  
Reichweite in g/cm<sup>2</sup> für p, d, <sup>3</sup>He,  $\alpha$  in verschiedenen Materialien nach Williamson et. al. <sup>17)</sup>

#### 5.4 Integrale Aktivierungskurven

Sie stellen die totale Aktivität einer bestimmten Kernreaktion als Funktion der Einfallenergie der geladenen Teilchen dar. Die Dicke der bestrahlten Probe muß dabei größer als die Reichweite der aktivierenden Teilchen sein. Die Einfallenergie kann man entweder vom Beschleuniger her regeln oder durch Abschwächerfolien, die vor die Probe gelegt werden. Der Aufbau einer Probe mit Abschwächerfolien und Flußmonitor ist in Bild 11 skizziert.

Aus den so gewonnenen Aktivierungskurven kann man leicht die Nachweisgrenze bei verschiedenen Energien und den Einfluß von Interferenzreaktionen ablesen. Um die einzelnen Reaktionen besser vergleichen zu können, wurden alle Aktivierungskurven auf folgende Parameter normalisiert:

Strahlstromstärke	10 $\mu$ A
Bestrahlungszeit	1 Halbwertszeit



**Bild 11**  
**Aufbau einer Probe für die Aktivierung mit geladenen Teilchen**

Nachweisgrenze ist diejenige Konzentration, bei der unter den oben genannten Bedingungen

1000 dpm am Ende der Bestrahlung erreicht werden. Eine einmal gemessene Aktivierungskurve ist wegen der Vorteile der Methode der äquivalenten Dicke für jedes Matrixmaterial gültig.

Es soll noch auf einen wesentlichen Unterschied zwischen der Aktivierungsanalyse mit geladenen Teilchen und der mit Photonen hingewiesen werden:

Mit geladenen Teilchen werden grundsätzlich nur Konzentrationen gemessen (vgl. Gl. 22 und 27), die Empfindlichkeit hat die Dimension dpm/ppm; mit Photonen werden ebenso wie mit Neutronen (wegen der homogenen Aktivierung) Massen oder Atommengen gemessen, die Empfindlichkeit hat die Dimension dpm/µg. In der Tabelle 10 sind die von Engelmann<sup>18)</sup> gemessenen Nachweisempfindlichkeiten für die leichten Elemente Be, B, C, N, O, F wiedergegeben.

Art und Energie der Teilchen [MeV]	Nachweisempfindlichkeit [ppb]					
	Be	B	C	N	O	F
gemessenes Radionuklid		<sup>11</sup> C	<sup>13</sup> N	<sup>11</sup> C	<sup>13</sup> N <sup>18</sup> F	<sup>18</sup> F
p { 5 7.5 10 12.5 15		0.92 0.40 0.24 0.17 0.13	110 40 27 22 18	9.2 0.83 0.50 0.33 0.22	430 8 220 3 115 1.6 68 1 43	8.3 1.6
gemessenes Radionuklid		<sup>11</sup> C	<sup>13</sup> N	<sup>11</sup> C <sup>15</sup> O	<sup>13</sup> N	
d { 5 10 15 20		3.5 2.1 0.75 0.15	7 0.7 0.5 0.4	3.3 0.8 0.5 0.055	14 1.6	
gemessenes Radionuklid	<sup>11</sup> C	<sup>11</sup> C	<sup>11</sup> C	<sup>13</sup> N	<sup>18</sup> F	<sup>18</sup> F
<sup>3</sup> He { 5 10 15 20	16.5 8.8 5 3.3	44 8.2 3 1.3	12 3.6 1.5 0.85	175 66 d 44 29	17 2.7 1.7 1.1	240 70 34 20
gemessenes Radionuklid	<sup>11</sup> C	<sup>13</sup> N	<sup>15</sup> O <sup>11</sup> C	<sup>13</sup> N	<sup>18</sup> F	<sup>18</sup> F
α { 26 30 34 38 42	70 17.5 8 3.9 2	20 10 6 3.5	5 3 16 2 4.4 1.3 1.75	12 5.4 3.2 2.2 1.7	45 6.4 2.1 1 0.7	2.9 1.1 0.7 0.5 0.4

**Tabelle 10**  
**Nachweisempfindlichkeit für Be, B, C, N, O und F in einer Matrix mit der Reichweite von Aluminium bei Aktivierung mit p, d, <sup>3</sup>He und α**

Bestrahlungszeit = eine Halbwertszeit des gebildeten Radionuklids; Strahlstrom = 10 µA; Mindestaktivität am Ende der Bestrahlungszeit = 1000 dpm nach Engelmann<sup>8)</sup>

**6. Das mit Dr. Engelmann vereinbarte Arbeitsprogramm für den Studienaufenthalt vom 1. Febr. 1971 – 31. Juli 1971**

Entsprechend den Interessen der BAM wurde beschlossen, daß der Bericht die leichten Elemente C, N, O in verschiedenen Metallen und Legierungen durch Aktivierungsanalyse mit energiereichen Photonen quantitativ bestimmen sollte. Die dafür infrage kommenden Kernreaktionen sind in der Tabelle 11 zusammengefaßt. Alle Produkte sind Positronenstrahler und haben außer  $F^{18}$  Halbwertzeiten im Bereich einiger Minuten.

Die zu untersuchenden Proben stammten aus verschiedenen Instituten:

1. CEN Saclay
2. BAM - Analysenkontrollproben
3. TU - Berlin, Institut für Metallphysik
4. BAM, 6.3

Ausgangselement	Primäre Reaktionen	Schwellenergie [MeV]	Interferenzen anderer Elemente	Schwellenergie [MeV]	Halbwertzeiten
C	$^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$	18,7	$^{14}\text{N}(\gamma, t)^{11}\text{C}$	22,7	20,3 min.
			$^{16}\text{O}(\gamma, \alpha n)^{11}\text{C}$	26	-
N	$^{14}\text{N}(\gamma, n)^{13}\text{N}$	10,5	$^{16}\text{O}(\gamma, t)^{13}\text{N}$	25	10 min.
			$^{19}\text{F}(\gamma, tn)^{15}\text{O}$	27,4	2,1 min.
O	$^{16}\text{O}(\gamma, n)^{15}\text{O}$	15,7	$^{20}\text{Ne}(\gamma, \alpha n)^{15}\text{O}$	20,4	-
			$^{20}\text{Ne}(\gamma, d)^{18}\text{F}$	21,1	1,7 h.
F	$^{19}\text{F}(\gamma, n)^{18}\text{F}$	10,5	$^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha n)^{18}\text{F}$	21	-

**Tabelle 11**  
Primäre und sekundäre photonukleare Reaktionen bei der Bestimmung von C, N, O, F

Verunreinigung	Matrixelemente	maximale Photonenenergie	minimale nachweisbare Gehalte [ppm]
C	Li, Be, B, Si, W	30 MeV	0,05 - 0,5
N	Li, Be, B, W	30 -"	0,5
	Ca, Na	20 -"	0,5 - 2
O	Li, Be, B	30 -"	0,05 - 0,5
	Ca, Na	20 -"	0,5 - 2
F	Li, Be, B, Si, W	30 -"	0,02 - 0,2
	Ca, Na	20 -"	0,2 - 2

**Tabelle 12**  
Beispiele zerstörungsfreier Analysen durch Photonenbestrahlung nach Engelmann<sup>9)</sup>

Die Ergebnisse sollten mit den Resultaten der Aktivierungsanalysen mit geladenen Teilchen verglichen werden, die ebenfalls vom Bericht am Zyclotron in Saclay durchgeführt wurden, sowie mit den Resultaten der Aktivierungsanalyse mit 14 MeV-Neutronen, die in der BAM durchgeführt wurden. Da fast alle durch  $(\gamma, n)$ -Prozesse aktivierten leichten Elemente reine Positronenstrahler sind, ist eine chemische Abtrennung des gesuchten Radionuklids in den meisten Fällen unumgänglich. Es gibt nur wenige Matrixelemente, in denen die leichten Elemente zerstörungsfrei bestimmbar sind (Tab. 12).

Einen großen Teil der praktischen Arbeit hat das Studium und die Durchführung der chemischen Trennungsgänge ausgemacht. Von deren Reproduzierbarkeit und Ausbeute hängt die Zuverlässigkeit der Analysenergebnisse ab; denn Fehler bei der Bestrahlung werden leicht durch die gleichzeitig bestrahlten Flußmonitore entdeckt.

**6.1 Bestimmung von Sauerstoff in Na hoher Reinheit**

Zur Einarbeitung in die Bestrahlungstechnik hat der Bericht zwei Wochen lang an dem Programm der Bestimmung der leichten Elemente C, N, O, F in den Alkalimetallen mitgearbeitet (F. Nordmann). Entsprechend dem Stand der Arbeiten wurde hauptsächlich Sauerstoff in Na bestimmt. Die Kontrolle der Reinheit des Natriums ist von industrieller Bedeutung, da es als Kühlflüssigkeit in den "schnellen Reaktoren" benutzt wird. Bereits Sauerstoffgehalte von 10 ppm lassen die Stahlrohre so stark korrodieren, daß die Sicherheit des Reaktors gefährdet ist. Wegen der unbedingt nötigen Kontrolle des Sauerstoffgehaltes in den Natriumkühlkreisläufen sind viele konventionelle Verfahren entwickelt worden. Sie beruhen auf der Bestimmung des zurückbleibenden Oxids nach der Entfernung des Metalls entweder durch Auflösung in einem organischen Lösungsmittel oder durch Amalgamation oder durch Destillation. Eine andere Methode ist unter dem Namen "plugging indicator" bekannt. Sie ist spe-

Element	Hauptreaktion	Schwelle [MeV]	T <sub>1/2</sub>	Parasitreaktion	Schwelle [MeV]	T <sub>1/2</sub>
O	a	$^{16}\text{O}(\gamma, n)^{15}\text{O}$	15,7	$^{19}\text{F}(\gamma, tn)^{15}\text{O}$	27,4	2,03'
				$^{20}\text{Ne}(\gamma, \alpha n)^{15}\text{O}$	20,4	2,03'
	b	$^{16}\text{O}(\gamma, t)^{13}\text{N}$	25			9,96'
	c	$^{16}\text{O}(\gamma, \alpha n)^{11}\text{C}$	26			20,3'
d	$^{18}\text{O}(\gamma, p)^{17}\text{N}$	16,3	4,2''			
Na	$^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha n)^{18}\text{F}$		110'			
	$^{23}\text{Na}(\gamma, n)^{22}\text{Na}$					
K	$^{39}\text{K}(\gamma, n)^{38}\text{K}$	13,1	7,7'			
C	$^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$	18,7	20,3'			
N	$^{14}\text{N}(\gamma, n)^{13}\text{N}$	10,5	9,96'			

**Tabelle 13**  
Haupt- und Parasitreaktionen bei der Bestimmung von O und N in den Alkalimetallen

ziell für die Kontrolle der Sauerstoffkonzentration im flüssigen Na entwickelt worden. Der Sauerstoffgehalt wird dabei aus der Löslichkeitskurve des Systems Na-Na<sub>2</sub>O bestimmt (Sättigung des Na an Na<sub>2</sub>O als Funktion der Temperatur). Die Nachweisgrenze aller beschriebenen Methoden liegt bei 5 - 10 ppm Sauerstoff in Na. Um die Sicherheit der konventionellen Verfahren in diesem Konzentrationsbereich zu kontrollieren, sollten Aktivierungsanalysen des Sauerstoffs und der anderen leichten Elemente durchgeführt werden, deren Nachweisgrenze bei Photonenaktivierung 0,1 µg Sauerstoff beträgt. Neben Sauerstoff sind in hochreinem Natrium die wichtigsten Verunreinigungen Kalium, Stickstoff und Kohlenstoff. Deshalb muß man bei der Analyse die folgenden teilweise konkurrierenden Kernreaktionen beachten (Tabelle 13).

Entsprechend den Daten der Tabelle 14 und den Aktivierungskurven (siehe Anhang) für die verschiedenen Konkurrenzreaktionen des Sauerstoffs sieht man, daß die Reaktionen b, c, d gegenüber a vernachlässigbar sind. Dagegen muß man die Parasitreaktion von F und Ne noch sorgfältig studieren, da diese Elemente einen zu hohen Sauerstoffgehalt vortäuschen können.

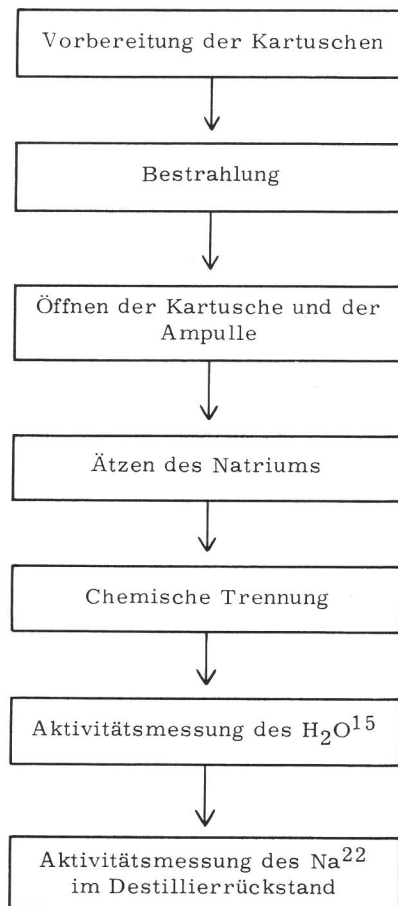
Um die oben erwähnte Nachweisempfindlichkeit zu erreichen, muß man das Nuklid O<sup>15</sup> von den anderen bei der Bestrahlung gebildeten Radionukliden F<sup>18</sup>, K<sup>38</sup>, C<sup>11</sup>, N<sup>13</sup>, Na<sup>22</sup>, die alle Positronenstrahler sind, durch einen chemischen Prozeß abtrennen.

#### Beschreibung der Arbeitsgänge

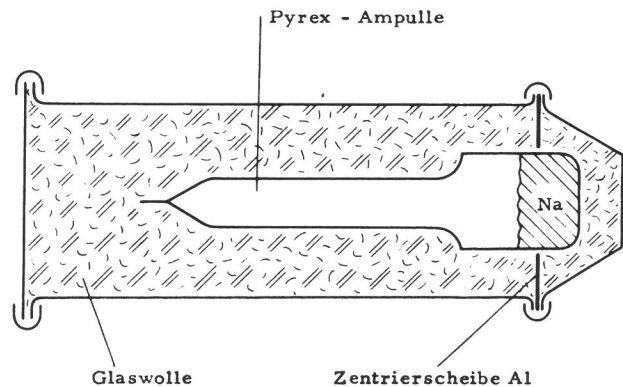
Die Na-Proben wurden direkt in Pyrex-Ampullen destilliert und unter Vakuum abgeschmolzen. Eine Analyse umfaßt die folgenden Arbeitsgänge (Tabelle 14).

#### Probenvorbereitung

Die Pyrex-Ampullen sind mit Al-Folie ausgekleidet, um das Natrium nach der Bestrahlung besser von dem ebenfalls stark aktiven Glas trennen zu können. Die Ampullen werden in die Al-Kartuschen mit einer hydraulischen Presse eingekapselt. Sie sind in Glaswolle eingebettet, damit sie beim Transport in der Rohrpost (10 m/sec) nicht zerbrechen (Bild 12).



**Tabelle 14**  
Ablaufplan der Sauerstoffbestimmung in Natrium



**Bild 12**  
Lage der Na-Ampulle in der Rohrpostkartusche

## Bestrahlung

Es wurde eine Bestrahlungszeit von 3 min gewählt, in der man ca. 65 % der Sättigungsaktivität des  $O^{15}$  erreicht. Die meisten Bestrahlungen wurden bei einer Elektronenenergie von 40 MeV und einer mittleren Stromstärke von  $50 \mu A$  durchgeführt. Abwechselnd mit den Na-Proben wurden Standards bestrahlt. (Ampullen, die mit entgastem Wasser gefüllt sind.) Die Standards sollen möglichst dieselbe Geometrie haben wie die Proben und wurden unter denselben Bedingungen bestrahlt, jedoch wegen der großen Sauerstoffmenge nur für eine Minute. Als nächster Schritt ist die Verwendung von NaOH als Standard geplant. Dieses Verfahren hat den Vorteil, daß Na und O unter genau denselben Bedingungen bestrahlt werden (Geometrie, Absorption des  $\gamma$ -Flusses in der Probe, Energieverteilung in der Probe).

## Ätzen

Nach der Bestrahlung und dem Öffnen der Kartusche in einer Bleikammer wird die Ampulle mit einem Hammer zerbrochen. Die Al-Folie und restliche Glassplitter werden mit einem Skalpell von dem Na-Block (Einwaage ca. 2 g) abgeschnitten. Danach wird das Na noch chemisch in einer Lösung von 10% Wasser und 90% Aethylalkohol geätzt. Diese Operation ist sehr wichtig, um alle Kontaminationen der Oberfläche des Na vor oder während der Bestrahlung zu beseitigen (Oxidation und Rückstoßkerne). Für Cs sind alle Arbeitsgänge identisch; nur muß man wegen des niedrigen Schmelzpunktes ( $28,5^\circ C$ ) besonders vorsichtig sein und in einer Argonatmosphäre arbeiten. Um mit dem Cs im festen Zustand arbeiten zu können, werden die Kartuschen vor und nach der Bestrahlung in flüssigem Stickstoff gekühlt.

Beim Ätzen werden ca. 25 % der Probemasse entfernt. Da das Verfahren des inneren Standards gewählt wurde, brauchte das Gewicht der Proben nicht bekannt zu sein.

## Chemische Trennung

Für die Trennung des  $O^{15}$  von der Matrix wurde das auch von Lutz<sup>4)</sup> verwendete Verfahren benutzt (Bild 13). Die geätzte Probe wird unter Stickstoff im Ballon A in 25 ml 6n NaOH aufge-

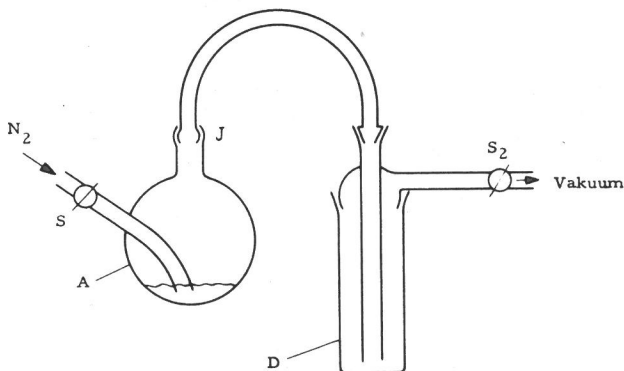


Bild 13  
Apparatur zur Abtrennung von  $O^{15}$  aus Na

löst. Als Lösungsmittel dient verdünnte NaOH, damit die stark exotherme Reaktion nicht zu heftig wird. Danach wird das Verbindungsstück J aufgesetzt und  $O^{15}$  als Wasser in die Kühlfalle B destilliert, die 0,5 ml gesättigte NaOH-Lösung enthält. Die Kühlfalle wird mit flüssigem Stickstoff gekühlt. Nach 2 min sind etwa 80 % des Wassers überdestilliert. Die Kühlfalle wird entfernt und das Destillat einige Sekunden unter Vakuum gekocht. Das NaOH in der Lösung sorgt dafür, daß flüssige Störaktivitäten, wie  $N^{13}$  während des Kochens abdampfen. Das Destillat wird in einen Meßzylinder gegossen, um die Ausbeute der Destillation zu messen, anschließend auf konstantes Volumen verdünnt und zwischen zwei NaJ-Detektoren in Koinzidenz gezählt. Die Ausbeute des Koinzidenzzählplatzes für die 0,51 MeV-Ver-nichtungsstrahlung betrug ca. 8 %. Der Rückstand im Destillierkolben A wird ebenfalls auf konstantes Volumen verdünnt und die Aktivität des  $Na^{22}$  aus der Reaktion  $Na^{23} (n, \gamma) Na^{22}$  gezählt. Diese Aktivität wird als innerer Standard benutzt. Das spezifische Aktivitätsverhältnis  $O^{15}/Na^{22}$  wird durch eine separate Bestrahlung einer kalibrierten NaOH-Lösung bestimmt. Die gesuchte  $O^{15}$ -Konzentration X ergibt sich dann aus der einfachen Beziehung

$$X = M \cdot R_1 / R_2 \quad (31)$$

Dabei bedeuten:

M = Gewichtsverhältnis O/Na in der Standardlösung

$R_1$  = Aktivitätsverhältnis  $^{15}O/^{22}Na$  der Probe

$R_2$  = Aktivitätsverhältnis  $^{15}O/^{22}Na$  des Standards

Resultate:

Mit dieser Methode wurden z.B. die folgenden Resultate erhalten:

Probe	E [MeV]	I [ $\mu A$ ]	$t_B$ [min]	$t_W$ [min]	Chem.-Ausb. [%]	Zähl.-Ausb. [%]	X [ppm]	$O^{15}$ [dpm/gNa]
Na 1	41	40	2	8,2	51,2	9,6	4,5	$4,8 \cdot 10^4$
Na 2	41	42	2,1	7,4	45,7	9,6	3,2	$3,5 \cdot 10^4$
Na 3	41	46	2	6,4	54,4	9,6	1,0	$1,1 \cdot 10^5$
Na 4	40	49	2	7,0	46,4	7,5	5,6	$7 \cdot 10^4$
Na 5	40	49	2	7,1	55,3	9,6	1,8	$2,6 \cdot 10^4$
Na 6	40	49	2	6,6	52,6	7,5	1,0	$1,4 \cdot 10^4$

Tabelle 15  
Resultate der Sauerstoffanalyse von Na

Über die Vorgeschichte dieser Proben bzw. andere Analysen lagen keine Daten vor.

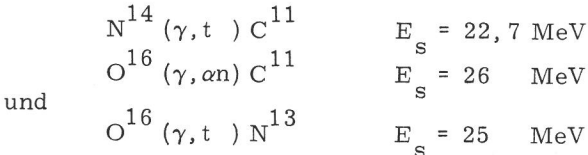
Zur Empfindlichkeit des Verfahrens ist zu sagen, daß die angegebenen Aktivitätswerte  $O^{15}$  auf Abfallzeit, Zählausbeute, 1 min Bestrahlungszeit und  $100 \mu A$  Strahlstrom auf dem Pt-Target korrigiert sind. Die gemessenen Zählraten lagen in der Größenordnung 200 - 600 ipm bei Beginn der Messung nach ca. 7 min Wartezeit (= Zeit für die chemische Trennung). Die Masse der untersuchten Proben betrug im Durchschnitt 1 g.

## 6.2 Bestimmung der Elemente N und C durch Photonenaktivierung

Die Elemente C und N können mit Photonen über die in Tabelle 8 aufgeführten Reaktionen aktiviert werden:



Die entsprechenden Aktivierungskurven für die beiden Reaktionen und für die wichtigsten Parasitreaktionen



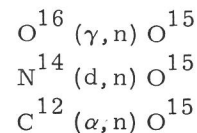
wurden bereits von Engelmann<sup>9)</sup> gemessen. Sie wurden während des Studienaufenthaltes zusammen mit F. Mayolet für die jetzige Target-Probe-Geometrie neu und mit größerer Präzision bestimmt. Als Photonentarget diente eine 6 g/cm<sup>2</sup> dicke Pt-Scheibe im direkten Elektronenstrahl.

Die Abtrennung der Radioisotope C<sup>11</sup> und N<sup>13</sup> erfolgte nach dem schon oft beschriebenen Verfahren der Oxidationsschmelze<sup>12)</sup>. Als Schmelzmittel diente eine Mischung von 87,5 % Mennige und 12,5 % Borsäureanhydrid. Die Probe wird auf die erstarrte Schmelze gelegt und in einem HF-Feld erhitzt. In dem flüssigen Schmelzmittel löst sich jede metallische Probe auf. Die Temperatur wird ca. 5 min lang auf 1000 - 1200 °C gehalten. Diese Zeit reicht aus, um C<sup>11</sup> als C<sup>11</sup>O bzw. C<sup>11</sup>O<sub>2</sub> und N<sup>13</sup> bzw. N<sup>13</sup>O 100-prozentig auszutreiben. In einem gereinigten He-Strom werden die Gase durch mehrere Filter und Öfen geleitet, in denen C<sup>11</sup> vollständig zu C<sup>11</sup>O<sub>2</sub> aufoxidiert und die Stickoxide zu N<sup>13</sup> reduziert werden (Bild 14), CO<sub>2</sub> wird mit Ascarit absorbiert, N<sup>13</sup> mit einem Molekularsieb (5 Å) bei 77°K. Das Molekularsieb

befindet sich in einer Kupferspirale direkt zwischen zwei NaJ-Detektoren, welche die beiden Vernichtungsquanten der β<sup>+</sup> von N<sup>13</sup> in Koinzidenz messen. Die Zählbeute dieser Anordnung betrug ca. 4%. Wegen der relativ langen Halbwertzeit des C<sup>11</sup> (20,3 min) befand sich das Ascarit in einem gewöhnlichen Glasröhrchen und wurde nach Beendigung aller Manipulationen an einem separaten Strahlungsmeßplatz gemessen.

## 6.3 Nachweis des Isotops O<sup>15</sup>

Entsprechend dem Entwicklungsstand der Analytentechnik im Laboratorium wurde besonders die Isolierung des Isotops O<sup>15</sup> aus verschiedenen Metallen durch Reduktionsschmelze studiert. Wenn man dieses Verfahren einwandfrei beherrscht, hat man eine schnelle Methode (wegen der kurzen Halbwertzeit von 2,03 mm) zur Spurenanalyse der drei Elemente O, N, C in der Hand. Denn durch Aktivierung mit verschiedenen Teilchen kann man aus jedem der drei Elemente mit großem Wirkungsquerschnitt O<sup>15</sup> erzeugen. Es wurden die folgenden Reaktionen benutzt



und unter dem Aspekt der Anwendung für die Aktivierungsanalyse genauer studiert. Dazu gehört vor allem die Untersuchung der Parasitreaktionen, die ebenfalls O<sup>15</sup> ergeben, und die Messung der Aktivierungskurven. Darunter versteht man die integrale Aktivität einer Probe nach der Bestrahlung mit einer Teilchenart bestimmter Energie (vgl. Kap. 5.4). Es soll jetzt nur noch das zur Isolierung des Reaktionsprodukts O<sup>15</sup> verwendete Verfahren der Reduktionsschmelze beschrieben werden. Die Aktivierungskurven und die analytischen Ergebnisse sind in den beigefügten Publikationen beschrieben.<sup>18) 19) 20)</sup>

### Reduktionsschmelze

Für die Extraktion des radioaktiven Sauerstoffisotops O<sup>15</sup> aus verschiedenen Metallen wurde das klassische Verfahren der Reduktionsschmelze benutzt. Die Metallprobe der Masse von ca. 1 g wird in einem Graphittiegel aufgeschmolzen. Der Graphittiegel befindet sich in einem Quarzrohr und wird durch ein Hf-Feld beheizt. Um auch Metalle wie Ta und Mo schmelzen zu können, werden Temperaturen über 2000 °C benötigt. Um so hohe Temperaturen in sehr kurzer Zeit zu erreichen, muß der HF-Generator wenigstens eine Leistung von 15 kW haben. Im flüssigen Zustand des Metalls reagiert der Sauerstoff mit dem Kohlenstoff des Tiegels unter Bildung von CO+CO<sub>2</sub> (Bild 15). Die entstehenden Kohlenstoffoxide werden durch ein Trägergas (He oder Ar) aus dem Ofen gespült (ca. 0,4 l/min). Der Gasstrom wird danach zuerst durch ein Filter aus Glaswolle geleitet, um feste Partikel zurückzuhalten. In einem weiteren Ofen wird das CO bei 550 °C über CuO zu CO<sub>2</sub> aufoxidiert. Zur Sicherheit ist noch ein Filter mit I<sub>2</sub>O<sub>5</sub> nachgeschaltet, um wirklich

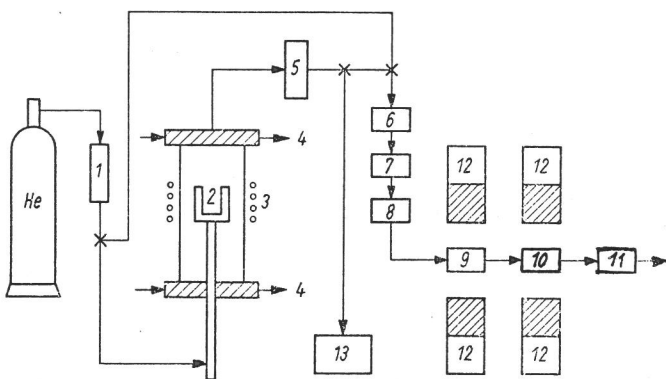


Bild 14  
Schema der Oxidationsschmelze zur Abtrennung von C<sup>11</sup> und N<sup>13</sup>

- |   |                         |
|---|-------------------------|
| 1 Ein Molekularsieb zur Reinigung des Trägergases He            | 6 Ofen mit Silberwolle  |
| 2 Porzellantiegel zur Aufnahme des Schmelzmittels und der Probe | 7 Ofen mit CuO          |
| 3 Heizspule   | 8 Reagenz nach Schütz   |
| 4 Kühlwasser  | 9 Ascarit-Filter        |
| 5 Filter aus Glaswolle  | 10 Molekularsieb        |
|   | 11 Durchflußmesser      |
|   | 12 Szintillationszähler |
|   | 13 Vorvakuumpumpe       |

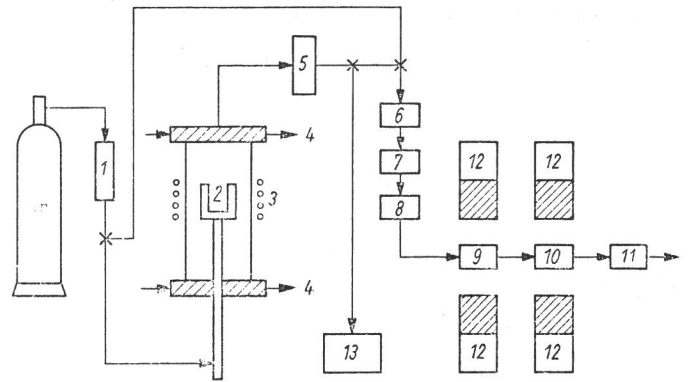
alles CO und CO<sub>2</sub> umzuwandeln. Das CO<sub>2</sub> schließlich, welches den gesamten O<sup>15</sup> der Probe enthalten soll, wird mit Ascarit (NaOH auf körnigem Asbest) absorbiert. Das Ascarit befindet sich in einer Plexiglasdose zwischen zwei NaJ-Detektoren, welche die 0,51 MeV  $\gamma$ -Quanten der Vernichtungsstrahlung in Koinzidenz messen. Die Zähleranordnung hat eine Ausbeute von 8 %. Der gesamte Prozeß vom Ende der Bestrahlung bis zum Beginn der Messung wird durch das Flußdiagramm (Tabelle 16) wiedergegeben:

	Zeiten	
	Linac	Cyclotron
Transport der Kapsel in die Bleikammer	20''	3''
Öffnen der Al-Kapsel in der Bleikammer	40''	40''
Ätzen der Probe	1''	1''
Bestimmung von Masse bzw. Dicke der Probe	30''	30''
Einbringen der Probe in den Graphittiegel	20''	20''
Auspumpen des Ofens	20''	20''
Schmelzen der Probe	2	2

**Tabelle 16**  
Ablauf der Extraktion von <sup>15</sup>O durch Reduktionsschmelze

Die Zeiten für jeden Arbeitsgang sind Erfahrungswerte die bei schnellem Arbeiten mit den im Labor vorhandenen Einrichtungen im Durchschnitt erreicht wurden. Dabei ist zu bemerken, daß die lange Transportzeit bei Zyklotronbestrahlungen allein dadurch verursacht wird, daß es noch keine direkte Rohrpostverbindung von der Bestrahlungsposition des Zyklotrons zur Bleikammer gibt. Im Falle des Linearbeschleunigers wird man durch bessere Installationen und Organisationen der einzelnen Arbeitsgänge höchstens noch zwei Minuten einsparen können.

Ein nicht vermeidbarer Nachteil der chemischen Trennung über Reduktionsschmelze liegt in der Bildung der Kohlenstoffoxide als Träger für O<sup>15</sup>.



**Bild 15**  
Schema der Abtrennung von O<sup>15</sup> und N<sup>13</sup> durch Reduktionsschmelze

- 1 Kühlfalle zur Reinigung des Trägergases Ar
- 2 Graphittiegel zur Aufnahme der Probe
- 3 Heizspule
- 4 Kühlwasser
- 5 Filter aus Glaswolle
- 6 Kühlfalle
- 7 CuO-Ofen
- 8 Reagenz nach Schütz
- 9 Ascarit
- 10 Molekularsieb
- 11 Durchflußmesser
- 12 Szintillationszähler
- 13 Vorvakuumpumpe

Dabei wird natürlich immer ein gewisser Anteil des ebenfalls aktivierten Kohlenstoffs C<sup>11</sup> aus der Probe am Ascarit absorbiert. Und zwar kann C<sup>11</sup> über verschiedene Kernreaktionen gebildet werden

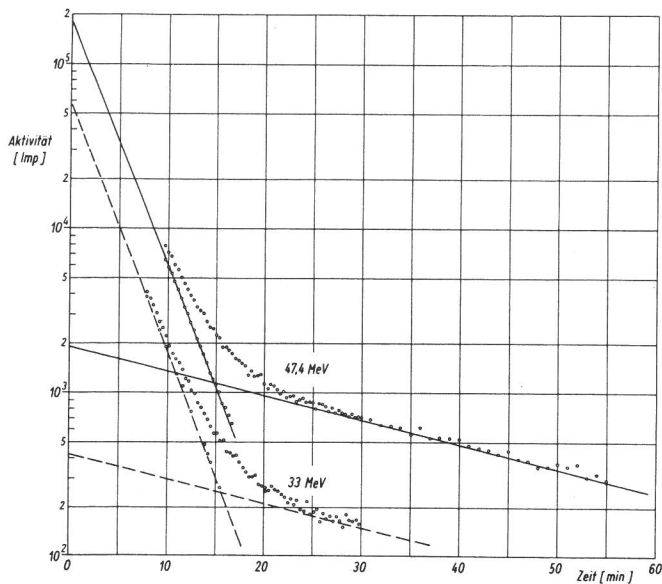
Photonen	Deuteronen	$\alpha$ -Teilchen
C <sup>12</sup> ( $\gamma, n$ )C <sup>11</sup>	B <sup>10</sup> (d, n)C <sup>11</sup>	B <sup>10</sup> ( $\alpha, t$ )C <sup>11</sup>
N <sup>14</sup> ( $\gamma, t$ )C <sup>11</sup>	B <sup>11</sup> (d, 2n)C <sup>11</sup>	B <sup>11</sup> ( $\alpha, tn$ )C <sup>11</sup>
O <sup>16</sup> ( $\gamma, \alpha n$ )C <sup>11</sup>	C <sup>12</sup> (d, t)C <sup>11</sup>	C <sup>12</sup> ( $\alpha, an$ )C <sup>11</sup>
	N <sup>14</sup> (d, $\alpha n$ )C <sup>11</sup>	N <sup>14</sup> ( $\alpha, \alpha t$ )C <sup>11</sup>
		O <sup>16</sup> ( $\alpha, 2\alpha n$ )C <sup>11</sup>

**Tabelle 17**  
Mögliche Kernreaktionen mit  $\gamma, d, \alpha$ , die zu dem Nuklid C<sup>11</sup> führen

In jedem Falle erhält man am Zählerausgang einen zeitlichen Aktivitätsverlauf mit den beiden Halbwertzeiten 2,1 min von O<sup>15</sup> und 20,3 min von C<sup>11</sup>. Dadurch allein schon ist die Nachweisempfindlichkeit für das kurzlebige O<sup>15</sup> entscheidend begrenzt.

In Bild 16 sind zwei Abklingkurven derselben Stahlsorte nach Aktivierung mit verschiedenen  $\gamma$ -Energien wiedergegeben. Man erkennt deutlich, daß der langlebige Untergrund von C<sup>11</sup> bei der höheren Energie relativ zu der gesuchten Aktivität von O<sup>15</sup> größer ist. Das Verhältnis der Anfangsaktivitäten beträgt 145 bei 33 MeV und 95 bei 47,4 MeV. Das bedeutet für die Praxis der Aktivierungsanalyse, daß der Linearbeschleuniger etwa bei 30 MeV die höchste Leistung abgeben sollte (vgl. Tab. 1). Auch bei den geladenen





**Bild 16**  
Abklingkurven nach Reduktionsschmelze von Stahlproben (BAM – ON 4 = 312 ppm Sauerstoff) für verschiedene Bremsstrahlungsenergien

Teilchen sind hohe Strahlströme interessanter als hohe Energien, da mit steigender Energie die Wirkungsquerschnitte der Parasitreaktionen rasch ansteigen.

Die chemische Ausbeute der Reduktionsschmelze hängt offenbar von der vollständigen Aufkohlung des Metalls während des Schmelzprozesses ab. Andererseits ist man wegen der kurzen Halbwertszeit des  $O^{15}$  daran interessiert, alle Arbeitsgänge möglichst kurz zu halten. Mit Stahl-Analysenkontrollproben der BAM und des NBS wurde deshalb eine Versuchsserie durchgeführt, in der die Abhängigkeit der chemischen Ausbeute von der Schmelzzeit bei  $T \approx 2000$  °C bestimmt wurde (Tab. 18)

Die Ausbeute betrug für alle Schmelzzeiten  $t > 1,5$  min

$$\eta = (70 \pm 4) \%$$

Warum kein höherer Wert erreicht wurde, konnte wegen der Kürze des Studienaufenthaltes nicht geklärt werden. Nach Dickens et.al.<sup>14)</sup> hängt die Sauerstoffabgabe bei der Reduktionsschmelze von mehreren Parametern ab: Art des Trägergases, Strömungsgeschwindigkeit, Zusammensetzung der Matrix, Schmelzzeit, Schmelztemperatur. Obwohl bei den Analysen alle Parameter möglichst konstant gehalten wurden, muß zusammenfassend gesagt werden, daß die Reduktionsschmelze, die mit einer recht einfachen selbstgebauten Anlage durchgeführt wurde, sehr störanfällig war und nicht in befriedigender Weise reproduzierbare Ergebnisse lieferte.

Nr.	Probe	%
1	ON3/11	99
2	ON3/12	63
3	ON3/3	68
4	ON3/4	71
5	ON2/2	98
6	ON4/3	36
7	ON4/1	64
8	ON4/2	40
9	ON3	58
10	ON4/4	62
11	ON4/7	74
12	ON1/3	50
13	ON4/12	97
14	ON3/13	94
15	1090/7	69
16	ON3/14	80
17	ON2/8	92
18	1092/2	71
19	ON1/9	59
20	ON1/10	58
21	ON4/16	59
22	ON1/15	71
23	04/3	66
24	04/4	57

**Tabelle 18**  
Chemische Ausbeute der Sauerstoffabtrennung aus Stahl über Reduktionsschmelzung, gemessen mit Analysenkontrollproben der BAM und des NBS (1090 und 1092)

Für den Betrieb in der BAM empfiehlt es sich deshalb, die langjährigen Erfahrungen der Abteilung 1.4 auf dem Gebiet der inaktiven Sauerstoffanalyse zu nutzen und die chemische Abtrennung des  $O^{15}$  mit dem dort vorhandenen Ströhlein-Gerät durchzuführen. Dieses Verfahren hätte den unschätzbaren Vorteil, daß erstmalig ein direkter Anschluß von konventioneller zu aktivierungsanalytischer Sauerstoffanalyse hergestellt würde. Außerdem könnte eine beträchtliche finanzielle Ersparnis erzielt werden.

## 7. Besichtigung des Laboratoriums Pierre Süe

Das Laboratorium für Aktivierungsanalyse Pierre Süe wurde 1968 von den beiden Institutionen CENS und CNRS gegründet, um deren Aktivität auf dem Gebiet der Aktivierungsanalyse zu koordinieren. Das Institut ist in einem einstöckigen Gebäude untergebracht, welches auf dem Gelände des CENS in unmittelbarer Nachbarschaft der beiden Reaktoren OSIRIS und EL.3 steht. Der Betrieb wurde am 1. Jan. 1970 aufgenommen. Das Laboratorium soll allen Mitarbeitern der CEA und des CNRS der Pariser Region sowie Forschern der Universitäten und der Industrie zur Verfügung stehen.

Die gesamte Laborfläche beträgt etwa 2500 m<sup>2</sup>. Es gibt eine heiße Zone mit 4 heißen Zellen (La Calhène), in denen die verschiedenen Rohrpostleitungen münden und sehr hohe Aktivitäten chemisch behandelt werden können. Zwölf chemische Laboratorien (jedes ca. 50 m<sup>2</sup>) sind auf zwei Etagen verteilt. Sie dienen der Probenvorbereitung und der chemischen Trennung nach der Bestrahlung. Außerdem gibt es zwölf Büros, eine Hand-Bibliothek, eine Werkstatt, ein Rechenzimmer usw. Die Zählräume liegen unter der Erde (niedriger Nulleffekt) und so weit wie möglich von der heißen Zone entfernt. Die Ausstattung mit Strahlungsmeßgeräten ist sehr großzügig. Es gibt allein 6 Vielkanalanalysatoren, davon 3 a 4000 Kanäle (alle Intertechnique), 3 Ge-Li-Detektoren, sowie die zugehörigen Datenausgabeeinheiten. Das Laboratorium liegt ca. 50 m vom Reaktor OSIRIS entfernt und ist mit den Cores beider Reaktoren durch Rohrpostleitungen verbunden. Die Transportkapseln werden jetzt - nach anfänglichen Versuchen mit Polyäthylen und Nylon - aus Polypropylen hergestellt. Wenn die Proben mit einer größeren Fluenz bestrahlt werden sollen, benutzt man Aluminium-Kapseln. Man muß dann jedoch

nach der Bestrahlung erst die sehr hohe Aktivität des Al<sup>28</sup> abklingen lassen, bevor man die Kapseln öffnen kann. Deswegen endet die Rohrpost für sehr hohe Aktivitäten in einem Wassertank. Diese Rohrpost wird hydraulisch betrieben. Die heiße Zelle, in der die bestrahlten Kapseln ankommen, ist mit den chemischen Laboratorien und den Zählräumen durch eine zweite Rohrpost verbunden. Diese hat einen engeren Querschnitt, so daß die kleineren Kapseln gerade in die großen Kapseln passen und direkt in den Reaktor transportiert werden können.

In den beiden Reaktoren EL.3 und OSIRIS stehen thermische Neutronenflüsse von 10<sup>12</sup> bis 1,5·10<sup>14</sup> cm<sup>-2</sup> sec<sup>-1</sup> zur Verfügung. Für die Aktivierungsanalyse ist besonders das Neutronenspektrum interessant. Der kleinere Reaktor EL.3 hat einen wesentlich geringeren Anteil schneller Neutronen ( $n_{th}/n_s = 5 \cdot 10^{12}/10^{10}$ ) als der größere OSIRIS ( $n_{th}/n_s = 1,5 \cdot 10^{14}/1,5 \cdot 10^{13}$ ). Eine Rohrrostverbindung vom Laboratorium Pierre Süe zu den Beschleunigern des CENS gibt es nicht. Aktivierungsanalysen mit geladenen Teilchen und Photonen werden von der Groupe Physique Analytique unter der Leitung von Dr. Engelmann durchgeführt.

In dem Rechenzimmer stehen zwei IBM-Karten-Locher, mit denen man auch Lochstreifen auf Karten uncodieren kann. Zum Rechnen muß man alle Karten ins Rechenzentrum tragen. Eine Konsole für direkten Verkehr mit dem Rechenzentrum gibt es nicht. Die elektronische Datenverarbeitung ist hier auf dem Gebiet der Aktivierungsanalyse nicht sehr weit entwickelt. Man benutzt dieselben Programme, die auch in der BAM gerade fertig geworden sind. Rechnergekoppelte  $\gamma$ -Spektrometer gibt es noch nicht.

1. Neutron yields from targets bombarded by electrons  
Barber, N.C., George, W.D.  
Pys. Rev. 116, 1551(1959)
2. Neutron production by electron bombardment of uranium  
Baldwin, G.G., Gaertner, E.R., Yeater, M.L.  
Phys. Rev. 104, 1652(1956)
3. King, J.D.  
Saskatchewan Accelerator Laboratory, Report No. 6
4. Zerstörungsfreie Analyse mittelalterlicher Goldmünzen  
Kowalski, H., Reimers, P.  
Bericht Nr. 62, KEG Büro Eurisotop Brüssel Nr.(1971)
5. Steele, E.L.  
Proc, 1965 Int. Conf. Modern Trends in Activation Analysis, Texas, April 1965, S.120
6. Use of a 60-MeV linac for fast and variable neutron activation analysis  
Wilkniss, P.E.  
Anal. Chem. 41, 421(1969)
7.  $\alpha, \beta, \gamma$ -ray spectroscopy  
Siegbahn, K.  
North Holland Publ. Comp.
8. Etude du rayonnement de freinage.  
Production des rayons  $\gamma$  par des accélérateurs d'électrons.  
Bernard, J.  
Rapport CEA No. 1969(1961)
9. Contribution à l'étude de l'analyse par activation au moyen des particules chargées et des photons gamma  
Engelmann, Ch.  
Thèses, Série A, no d'ordre 660 Orsay (1970)
10. Calculation of sensitivities in photon activation analysis  
Lutz, G. J.  
Anal. Chem. 41, 425(1969)
11. The yields of radioactivities induced by  $(\gamma, n)$  - reactions with 20 MeV bremsstrahlung  
Oka, Y., Kato, T., Nomura, K., Saito, T.  
Bull.Chem. Soc. Japan 40, 575(1965)
12. Dosage de l'azote dans les métaux par fusion oxydante  
Boillot, P., Boulin, R., Jaudon, E.  
Chimie Analytique 47, 120(1965)
13. Systematics of photoneutron reactions  
Nathans, R., Halpern, J.  
Phys. Rev. 93, 437(1954)
14. Die Bestimmung des Sauerstoffs in Eisen- und Metallpulver  
Dickens, P., König, P., Zimmermann, K.  
Stahl und Eisen 86, 413(1966)
15. Sur l'utilisation des particules  $\alpha$  pour le dosage de l'oxygene et du carbone.  
Engelmann, Ch.  
C.R. Acad. Sc. Paris 258, 4279(1964)
16. Contribution à l'analyse par activation avec particules chargées  
Chevarier, N., Giroux, J., Tran, M.D., Tousset, J.  
Bull. Soc. Chim. Fr. 8, 2893(1967)
17. Tables of range and stopping power of chemical elements for charged particles of energy 0,05 to 500 MeV  
Williamson, D.F., Boujot, J.P., Picard, J.  
CEA-R 3042, Saclay (Lul)
18. Contribution à l'Etude de la Détermination du Carbone et de l'Azote par Activation au Moyen des Réactions Nucléaires  $^{12}\text{C}(\alpha, n)^{15}\text{O}$  et  $^{14}\text{N}(d, n)^{15}\text{O}$   
Mayolet, F., Reimers, P. und Engelmann, Ch.:  
Proc. Int. Meeting Chem. Anal. by Charged Particle Bombardement,  
Namur 1971
19. Vergleich verschiedener aktivierungsanalytischer Verfahren bei der Spurenanalyse von Sauerstoff  
Reimers, P., Mayolet, F. und Engelmann, Ch.:  
eingereicht bei Radiochimica Acta
20. Zur Analyse von hochreinem Eisen  
Blümel, G., Engelmann, Ch. und Reimers, P.:  
phys. stat. sol. (a) 10, K69 (1972)



**ACCELERATEUR LINEAIRE D'ELECTRONS  
DE 60 - 80 MEV**

**DE SACLAY**

**Département de Recherche Physique**

**Service de la Métrologie et de la  
Physique Neutroniques Fondamentales**

L'accélérateur linéaire d'électrons du C.E.N. Saclay est essentiellement utilisé à des études et des mesures de physique neutronique, à des études de réactions photonucléaires, ainsi qu'à des expériences de dosage par activation par rayons  $\gamma$ . Ces différents types d'utilisation ont défini les caractéristiques générales de l'appareil: énergie relativement basse des électrons accélérés mais courant crête très intense en impulsions brèves et courant moyen élevé en impulsions longues, avec une dynamique des réglages permettant de larges variations (facteur 100) de la durée des impulsions et de l'intensité du courant d'électrons accélérés.

Mis en service en 1958, cet Accélérateur a été l'objet de constantes transformations visant à améliorer sa fiabilité et, à accroître ses performances tout en les adaptant aux besoins des utilisateurs. Une étape particulièrement importante a été accomplie pendant la période de 1966/1969: elle a conduit à un appareil complètement rénové (les modulateurs, les sections accélératrices la plupart des périphériques sont entièrement neufs ainsi que nombre des dispositifs expérimentaux d'utilisation dont la fiabilité est remarquable et dont les caractéristiques sont au niveau de celles des plus récents Accélérateurs ayant les mêmes applications.

**I - HISTORIQUE**

- 1958 - Mise en service de l'Accelerateur construit par C.S.F. suivant les spécifications générales suivantes:
  - 2 sections à cavités pressées, alimentées chacune par un modulateur 15 MW équipé d'un Kystron CSF (4 MW, 5 KW)
  - caractéristiques nominales 28 MeV à 85 mA de courant crête pour des impulsions de durée comprise entre 0,25  $\mu$ s et 2  $\mu$ s et de fréquence maximale 500 HZ.
- 1962 - Installation d'un triode CSF capable de délivrer des impulsions de 0,4 A d'une durée de 50 ns.

- 1964 - Adjonction d'une 3ème section de même type que les deux premières portant les caractéristiques nominales à 46 MeV pour 85 mA.
- 1966 - Doublement de la fréquence de répétition maximale pour les impulsions courtes, portées ainsi à 1000 HZ
  - Modification de l'injection permettant l'obtention d'impulsions très brèves (jusqu'à 10 ns).
- 1967 - Refonte des modulateurs de puissance 15 MW
- 1968 - Réalisation d'un 4ème modulateur 15 MW
- 1969 - Elimination des trois sections anciennes et remplacement par quatre sections brasées Thomson-CSF (type 4LS)
  - Refonte et renovation des équipements périphériques

Il convient de noter que les études et travaux d'amélioration postérieurs à 1964 ont été effectués par l'équipe ayant la charge de l'accélérateur.

**TABLEAU I  
FONCTIONNEMENT DE L'ACCELERATEUR LINEAIRE  
DE 1960 A 1970**

ANNÉE	NOMBRE DE JOURS DE FAISCEAU	NOMBRE D'HEURE H. F. (faisceau disponible)
1960	91,5	1326
1961	170,5	2432
1962	114	1816
1963	139	2204
1964	111,5	1999
1965	189,5	3047
1966	163	2639
1967	201	3708
1968	196,5	3905
1969	136	2643
1970 (estimation)	192,5	3883

Le temps annuel d'utilisation au cours des dix dernières années figure dans le tableau 1; il montre une croissance constante si l'on tient compte du fait que, au cours des années 1962, 1964 et 1969, les travaux ci-dessus mentionnés ont immobilisé l'accélérateur pendant plusieurs mois.

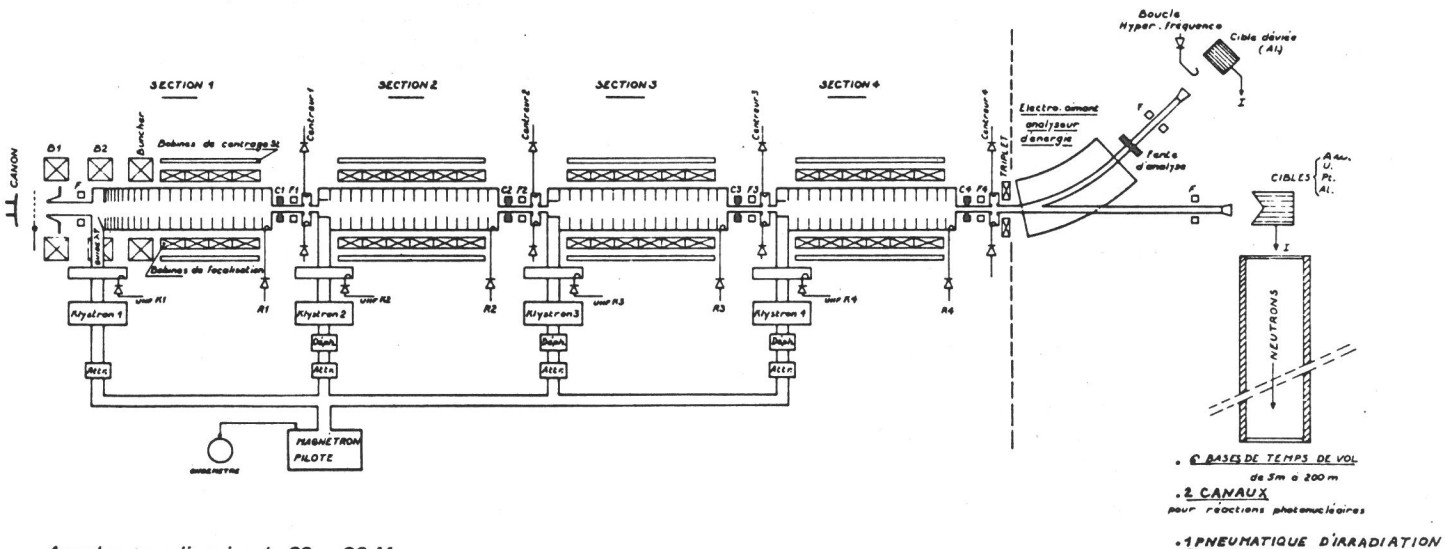
## II - CARACTERISTIQUES GENERALES - Figure 1)

- GUIDE ACCELERATEUR
  - 4 sections à ondes progressives en bande S. (2998 Mc/s)
  - Cavités brasées, à champ constant.
  - Buncher à 0,4 c incorporé à la 1ère section - mode  $\pi/2$  - longueur HF: 2,2 m
  - 3 sections standard de 2,5 m H.E. - mode  $2\pi/3$ .
  - Temps de remplissage: 0,7  $\mu$ s
  - Champ électrique maximum 85.000 V/cm.
  - Vide par pompes turbomoléculaires ( $10^{-7}$  Torr).
- CANON
  - Type triode - haute tension de 40 KV.
  - Filament à chauffage direct en Tungstène.
  - Vide par pompe ionique. (25 l/s)
  - Régime d'impulsions:
    - a) - Impulsions courtes
      - variables (par bonds) de 10 à 200 ns.
      - fréquence de répétition de 1 c/s à 1000 c/s.
    - b) - Impulsions longues
      - variables continuellement de 200 ns à 2  $\mu$ s.
      - fréquence de répétition de 1 c/s à 500 c/s.

- TUBES DE PUISSANCE
  - Oscillateur: Magnétron Thomson-CSF type MCV 1055 H (300 KW)
  - Amplificateur: pour chaque section 1 klystron Thomson-CSF type F 2015 (5 MW; 6 KW)
- FAISCEAU D'ELECTRONS
  - 80 % du faisceau dans  $\varnothing$  6 mm (à fort courant).
  - Puissance moyenne maximum: 8 KW.
  - Energie à courant nul: 80 MeV.
  - Energie moyenne: 60 MeV.
- CIBLES UTILISEES
  - 1 - Cible en Uranium naturel pour les expériences de neutroniques (60 % du temps).
  - 2 - Cible en Or pour les expériences photo-nucléaires (30 % du temps).
  - 3 - Cible de Platine pour les expériences de analyse par activation (10 % du temps).
  - 4 - Capteur d'Aluminium pour les études sur la dynamique du faisceau d'électrons.

## III - REGIME DE FONCTIONNEMENT ACTUEL

- La conduite de l'accélérateur ainsi que les études et réalisations visant à améliorer ses performances sont assurées par une équipe de 8 techniciens supérieurs, sous la responsabilité d'un ingénieur et d'un technicien principal.
- Le régime de fonctionnement actuel (du lundi matin au vendredi) permet de disposer du faisceau pendant 350 heures par mois en moyenne.
- Les performances actuelles sont indiquées par le tableau 2.



Accelerateur lineaire de 60 - 80 Mev.

TABLEAU II

Performances actuelles de l'Accélérateur Linéaire de 80 MeV du  
CEN/Saclay comparées au précédent accélérateur

	Accélérateur à 3 sections pressées	Accélérateur à 4 sections braisées	Gain	
<u>A/Généralités</u>				
-puissance UHF disponible	20 Kw	26 Kw	1,3	
-longueur UHF d'accélération	9 m	10 m	1,1	
-énergie à courant nul	55 MeV	84 MeV	1,5	
-focalisation moyenne	380 Gauss	600 Gauss	1,6	
<u>B/Régime permanent de 0,3 à 2/μs, 500 c/s</u>				
-puissance maximum réalisée	4,2 Kw	8 Kw	1,9	- la cible productrice de positons limite la puissance faisceau à 2,5 Kw
-fonctionnement type 2 μs				
Intensité	85 mA	100 mA	1,2	
Energie moyenne	46 MeV	60 MeV	1,3	
Puissance	3,9 Kw	6 Kw	1,5	
<u>C/Régime stocké de 10 à 300 ns, 1000 c/s</u>				
1/Fonctionnement type 100 ns				
Intensité crête maximum	0,6 A	0,9 A	1,5	- la cible productrice de neutrons a été testée jusqu'à une puissance faisceau de 4 Kw
Intensité crête usuelle	0,4 A	0,8 A	2	
Energie moyenne	34 MeV	50 MeV	1,5	
Puissance à 500 c/s	0,68 Kw	2 Kw	2,9	
Puissance à 1 000 c/s	1,36 Kw	4 Kw	2,9	
-----				
2/Fonctionnement type 50 ns				
Intensité crête maximum	0,8 A	1,6 A	2	* régime de fonctionnement habituel pour la production de neutrons
Intensité crête usuelle	0,6 A	1,4 A	2,3	
Energie moyenne	42 MeV	60 MeV	1,4	
Puissance à 500 c/s *	0,56 Kw	1,8 Kw	3,2	
Puissance à 1 000 c/s	1,12 Kw	3,6 Kw	3,2	

