

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Neutronen aus Spallationsreaktionen

Der Begriff der *Spallationsreaktion* ist in der Kernphysik nicht präzise definiert. Man versteht darunter Reaktionen von Hadronen (100 MeV bis einige GeV) mit Kernen. Die entstehenden Reaktionsprodukte sind im wesentlichen Nukleonen und kompositäre Teilchen sowie ein targetähnlicher Restkern [Hüf85]. Erste Spallationsexperimente im Labor wurden in den 50er und 60er Jahren durchgeführt.

Bei Reaktionen mit schweren Kernen werden hauptsächlich Neutronen als Reaktionsprodukte freigesetzt, auch wenn primär ebenso Protonen und andere kompositäre Teilchen den Kern verlassen. Allerdings werden die geladenen Teilchen durch die Coulombbarriere unterdrückt und unterliegen außerdem in dicken Targets der elektronischen Abbremsung. Geladene Teilchen können in Abhängigkeit ihrer kinetischen Energie und Ladung ein massives Target nur verlassen, wenn der Abstand Entstehungsort – Oberfläche hinreichend gering ist. Diesen Einschränkungen unterliegen Neutronen nicht. Spallationsreaktionen sind somit eine effiziente Methode zur Freisetzung von Neutronen.

Um zu gewährleisten, daß die Wahrscheinlichkeit $(1 - e^{-\frac{L}{L_{\text{reac}}}})$ für eine Reaktion eines Protons im Target möglichst groß ist, muß die Targetlänge L groß gegenüber der Reaktionslänge L_{reac} sein, wobei

$$L_{\text{reac}} = \frac{1}{\sigma \cdot \varrho}$$

mit dem geometrischen Wirkungsquerschnitt $\sigma = \pi R^2$ und der Atomdichte ϱ des Materials ist. Für Blei mit $\sigma = 1,65$ barn und $\varrho = 3,3 \cdot 10^{22}$ Atome/cm³ errechnet sich eine Reaktionslänge von 18 cm. Um eine hohe Reaktionsrate und damit Ausbeute zu erreichen, werden die Targets mit etwa 3 bis 4 Reaktionslängen dimensioniert, auch um weitere Reaktionen durch die

leichten und hochenergetischen Spallationsprodukte einer primären Reaktion auszunutzen. Die sich ausbildende Kaskade von Sekundärreaktionen wird *internukleare Kaskade* genannt.

Untersucht man aber die Physik einer Spallationsreaktion, müssen möglichst alle Reaktionsprodukte nachgewiesen werden, d. h. sowohl Neutronen als auch geladene Teilchen. Zu dem Zweck sind hinreichend dünne Targets zu wählen (einige 1000 Atomlagen).

Aus mehreren Gründen interessiert man sich heute wieder intensiver für die Spallationsreaktionen: Es besteht ein steigender Bedarf an Neutronenquellen, und die Beschleunigertechnik ist soweit fortgeschritten, hohe Strahlströme (bis zu einigen mA) zu ermöglichen. Somit stellen Spallationsneutronenquellen eine Alternative zur Neutronenfreisetzung in Spaltreaktoren dar.

- An erster Stelle sei erwähnt, daß thermische Neutronen als Meßsonden immer häufiger eingesetzt werden. Für **Strukturuntersuchungen** an kondensierter Materie bedient sich die Forschung in zunehmendem Maße der Neutronenstreuung [Car77] als Meßmethode mit atomarer Auflösung (Wellenlänge für thermische Neutronen in der Größenordnung von 0,2 nm). Ein Nachteil der Röntgenstrukturanalyse besteht in der Tatsache, daß das Meßsignal proportional zur Elektronendichteverteilung und damit zur Ladung Z der untersuchten Substanz ist. Wasserstoff ist praktisch nicht nachweisbar, wie es auch unmöglich ist, verschiedene Isotope eines Elementes zu unterscheiden. Neutronen wechselwirken nicht mit den Elektronen, sondern mit den Kernen. Die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit variiert nicht nur mit Z , sondern auch mit der Masse A (allerdings nicht in einer regulären Art und Weise), Isotope können unterschieden werden. Der Neutronenstreuquerschnitt am Wasserstoff ist besonders groß für die inkohärente Streuung, somit eignen sich Neutronen hervorragend zur Untersuchung biologischer Proben und organischer Festkörper. Durch die Ladungsneutralität können Neutronen Informationen aus tiefen Schichten liefern, außerdem wird die Probe durch die niedrige Energie fast nicht geschädigt. Die kinetische Energie thermischer Neutronen beträgt etwa 25 meV, ist ungefähr 10^6 mal kleiner als die der Röntgenstrahlung gleicher Wellenlänge. Da das Neutron einen Spin und somit ein magnetisches Moment aufweist, ist es möglich, Informationen über Spin- und magnetische Eigenschaften des streuenden Atomkernes zu erhalten.
- Desweiteren sei der Begriff der **Transmutation** erwähnt, eine Idee, deren Voraussetzung eine intensive Neutronenquelle ist [Bow92]. Transmutation ist ein Verfahren zur *Beseitigung* langlebiger radioaktiver Nu-

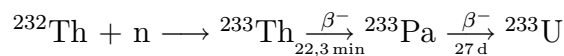
klide durch Anlagerung von einem oder mehreren Neutronen und damit Erzeugung von stabilen bzw. solchen Nukliden, deren Zerfallskette mit kurzer Lebensdauer in stabilen Isotopen endet.

Die langlebigen Jod- und Technetiumisotope¹, die bei der Kernspaltung aus Uran entstehen, aber auch Plutonium, könnten abgebaut werden.

- Die Idee des **Energieverstärkers** [Car93] beruht auf dem Vorschlag, daß ein kleiner Teil $(1 - k)$ der in einem unterkritischen ($k < 1$) Kernreaktor produzierten Neutronen mit Hilfe eines Protonenbeschleunigers über Spallationsreaktionen erzeugt werden. Der Energieverstärkungsfaktor ist dann das Verhältnis der gesamten im Reaktor erzeugten Energie zu der Energie, die notwendig ist, um die $(1 - k)$ Neutronen zu erzeugen. Der Energieverstärkungsfaktor ist im wesentlichen $V = \frac{V_0}{1-k}$. $V_0 \approx 180 \text{ MeV}/40 \text{ MeV}$ ist das Verhältnis der Energien, die zur Erzeugung eines nutzbaren Neutrons bei der Kernspaltung (180 MeV) bzw. in einer Spallationsquelle (40 MeV) freigesetzt werden. Kommt es zu Komplikationen, wird nur der Beschleuniger und damit die die Kettenreaktion aufrechterhaltende Neutronenquelle abgeschaltet.

[Bow92] schlägt eine Kombination eines Energieverstärkers mit einer Transmutationsanlage vor. Ein Teil der überschüssigen Neutronen wird für die Transmutation verwendet.

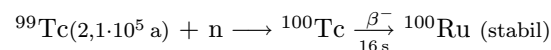
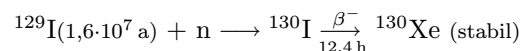
- Der **Thoriumreaktor**: Da in einem beschleunigergetriebenen Reaktor wesentlich mehr Neutronen produziert werden können als zur Aufrechterhaltung der Kettenreaktion notwendig sind, kann ein Teil der Neutronen zum Erbrüten von spaltbarem Material benutzt werden. Hier ist insbesondere der Zyklus



zum Erbrüten von spaltbarem ${}^{233}\text{U}$ von Interesse. Ein Energieverstärker bzw. beschleunigergetriebener Reaktor auf Thoriumbasis hat vor allem die Vorteile:

1. unterkritischer Reaktor
2. kleines radioaktives Inventar

1



3. Produktion von Transaktiniden (Neptunium, Plutonium) sehr gering, da diese nur durch die sukzessive Anlagerung von Neutronen an ^{233}U erreicht werden kann, wobei dies noch durch die große Spaltwahrscheinlichkeit der leichten Uranisotope (^{233}U 91%, ^{234}U 46%, ^{235}U 80,6%) stark behindert wird.
4. Es gibt nach heutigem Wissensstand auf der Erde wesentlich mehr Thorium als Uran.

1.1.1 Stand der Technik

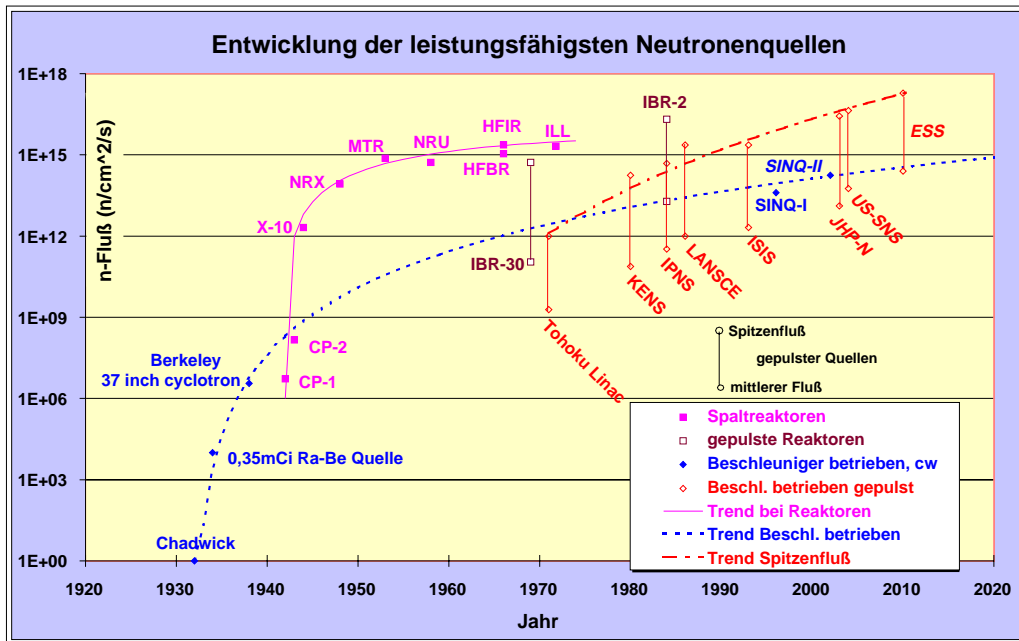


Abbildung 1.1: X-10: Oak Ridge, MTR: Idaho Falls, CP-1/-2: Chicago, NRX/NRU: Chalk River, HFBR: Brookhaven, HFIR: Oak Ridge, ILL: Grenoble, IBR-2/-30: Dubna, KENS/JHP-N: Tsukuba, IPNS: Argonne, LANSCE: Los Alamos, ISIS: Rutherford Appleton Laboratory, SINQ-I/-II: Schweiz. Abb. nach G. Bauer (PSI).

Zur Zeit sind noch überwiegend Forschungsreaktoren als Neutronenquellen im Einsatz. Jedoch haben Kernreaktoren eine materialtechnisch bedingte Lebensdauer von 40–60 Jahren. Außerdem ist der (meist kontinuierliche) Neutronenfluß aus einem Kernreaktor begrenzt durch die bei der Spaltung entstehende Wärme, die abgeführt werden muß. Im Mittel entstehen bei der Uranspaltung 2,4 Neutronen. Ein Neutron davon hält die Kettenreaktion aufrecht, so daß pro Spaltung nur ein Neutron genutzt werden kann.

Dabei wird eine Wärme von 180 MeV freigesetzt. Die weltweit intensivste Kernspaltungs-Neutronenquelle ist seit Anfang der 70er Jahre der Hochflußreaktor am Institut Laue Langevin [wwwILL] (ILL) in Grenoble mit $1,5 \times 10^{15}$ n/(cm²s).

Bei den Spallationsneutronenquellen werden hochenergetische Protonen auf ein massereiches Target (z.B. Blei) geschossen. Auf diese Weise liegt die Ausbeute bei 20–25 Neutronen [Pie97, Hil98] pro einfallendem Proton und GeV, die freigesetzte Wärme im Spallationstarget pro Neutron beträgt nur noch 1/6tel der bei der Spaltung freiwerdenden Energie pro nutzbarem Neutron. Die leistungsfähigste gepulste Spallationsquelle mit einer Strahlleistung von 160 kW ist seit 1985 ISIS [wwwISIS] am Rutherford Appleton Laboratory mit einem Spitzenfluß vergleichbar dem am Reaktor des ILL. Weitere Spallationsneutronenquellen (siehe Abb. 1.1 sowie [wwwESSLinks]) gibt es in den USA, Japan und der Schweiz. Die Quelle in der Schweiz liefert einen kontinuierlichen Neutronenfluß (≈ 1 MW), die anderen sind gepulst. Die Pulsung ermöglicht es, Flugzeitmessungen der Neutronen durchzuführen. Außerdem sind in der kurzen Pulsdauer Spitzenflüsse erreichbar, die 2 Größenordnungen über dem mittleren Fluß des ILL-Reaktors liegen.

1.2 Die Europäische Spallationsquelle

Ein ehrgeiziges Projekt, gefördert durch die EU, ist die Planung der Europäischen Spallationsquelle ESS (European Spallation Source) [Gar95, Len97, wwwESS] mit 5 MW Strahlleistung, dem 30fachen der Strahlleistung von ISIS. Die vorgeschlagenen Parameter sind in Tabelle 1.1, das Referenzdesign in Abbildung 1.2 wiedergegeben. Erstmals wurde Anfang der 90er Jahre auf

Tabelle 1.1: Für die ESS vorgeschlagene Parameter (Referenzdesign)

maximaler Neutronenfluß	2×10^{17} n/(cm ² s)
Pulslänge, Frequenz	1 μ s, 50 und 10 Hz
Protonenstrom	$2,5 \times 10^{16}$ p/s
Protonenstrahlenergie	1,334 GeV
durchschnittliche Strahlleistung	5 MW
Profil des Protonenstrahles	6×20 cm ²
Target	2 Targetstationen, Flüssigmetall (Hg)

Initiative des Forschungszentrums Jülich und des Rutherford Appleton Laboratory (UK) der Gedanke für eine *next generation* Neutronenquelle geäußert.

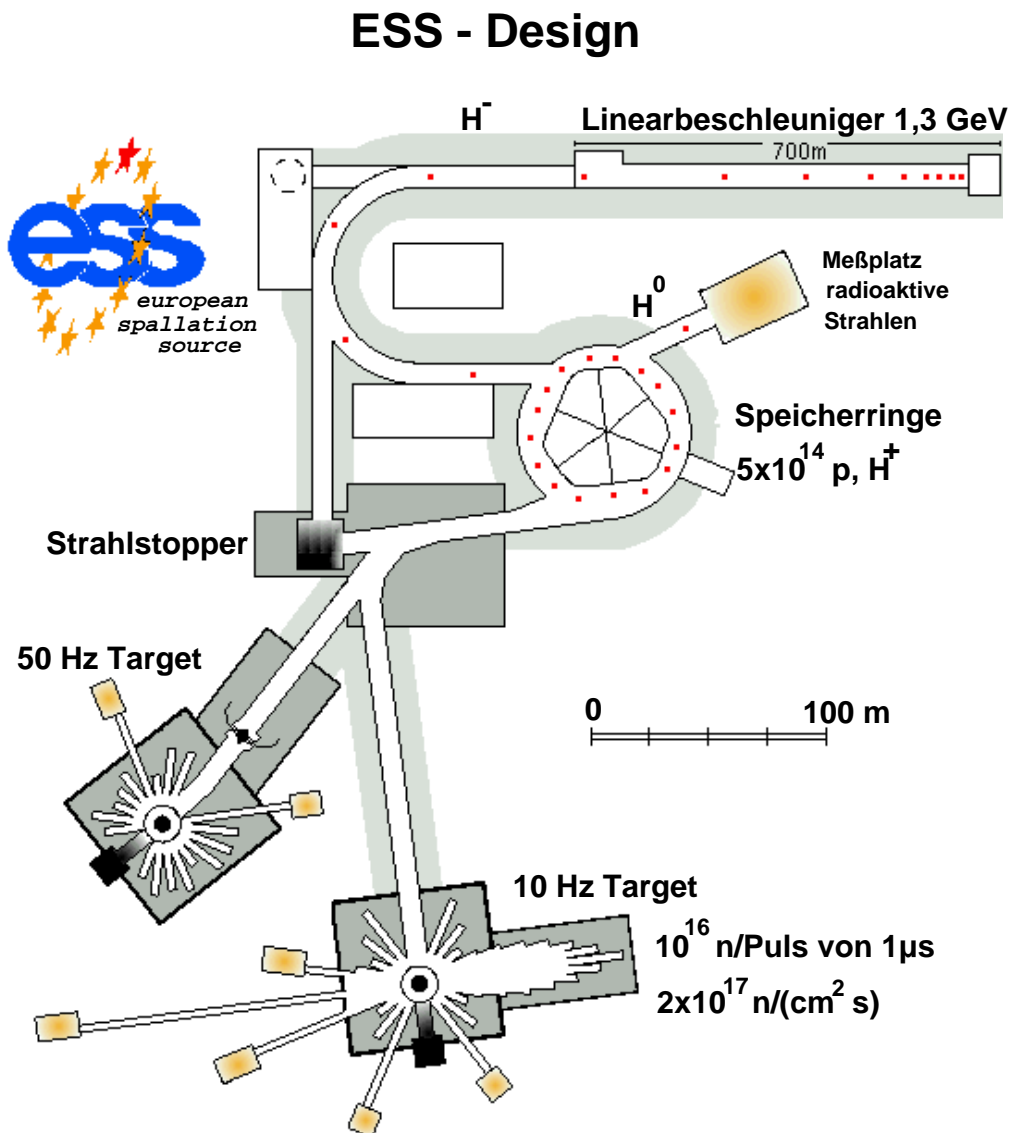


Abbildung 1.2: Referenzdesign der ESS; Im Linearbeschleuniger werden negative Wasserstoffionen auf die Endenergie von 1,334 GeV beschleunigt. Am Eingang der 2 übereinanderliegenden Speicherringe erfolgt die Umladung nach H^+ , ein geringer Prozentsatz, der nur in H^0 umgeladen wird, steht einem Meßplatz für Experimente mit radioaktiven Strahlen zur Verfügung. Im Störfall wird nicht der Beschleuniger abgeschaltet, sondern der Strahl auf den Strahlvernichter geführt. Vier von fünf Protonenpulsen werden in das 50 Hz Target gelenkt, einer von fünf in das 10 Hz Target. Als animiertes Applet im Internet zu finden unter <http://www.hmi.de/people/enke/ess>

Next generation soll dabei den qualitativen Unterschied zu heutigen Spallationsquellen hervorheben. Inzwischen ist der ESS Final Report [ESS96] veröffentlicht worden.

In der Forschungs- und Entwicklungsphase bis Ende des Jahres 2001 sind etliche Fragen zu klären: Ist es z.B. sinnvoll, den Linearbeschleuniger supraleitend auszuführen? Wie hoch sind die zu erwartenden Strahlverluste, welche Probleme kann es mit den Targetmaterialien (Strahlenschädigung, mechanische Festigkeit) geben?

Ursprünglich wurde ein massives Tantaltarget mit Wasserkühlung favorisiert, wie es auch bei ISIS eingesetzt wird. Jedoch erzeugen die 100 kJ pro 1 μ s langem Puls Schockwellen im Target, es treten hohe Temperaturgradienten auf. Hochrechnungen der ISIS-Daten ergaben eine Lebensdauer der Ta-Targets von etwa 1000 h. Das entspricht einem Servicezyklus des Hochflußreaktors am ILL und wird als zu gering betrachtet. Außerdem reduziert die Wasserkühlung merklich die spezifische Ausbeute Neutronen pro cm^3 Target, da sich Schichten von Targetmaterial und Wasser abwechseln und somit die effektive Dichte schwerer Targetkerne, in denen im wesentlichen die Nukleonen produziert werden, niedriger ist als in einem kompakten, nicht wassergekühlten Target. Ein rotierendes wassergekühltes Target würde die Lebensdauer erhöhen, nicht aber die Neutronenausbeute.

Aus diesen Gründen soll flüssiges Metall [Bau95] als Targetmaterial eingesetzt werden (siehe Tabelle 1.2).

Tabelle 1.2: Planungsdaten für den Target-Kreislauf der ESS bei einer mittleren Strahlstromleistung von 5 MW

Masse des Hg-Kreislaufs	15 t
Fluß durch die Reaktionszone	175 kg/s
berechnete Temperatur des Hg	100°C am Einfluß, 220°C am Ausfluß

Weitere Vorteile sind:

- Da das Material durch die Reaktionszone fließt, wird einmal ein Abtransport von Wärme, zum anderen aber auch von in der Reaktion entstehenden radioaktiven Isotopen gewährleistet.
- Durch das Vermeiden der Wasserkühlung kommt es nicht zur Elektrolyse und Aktivierung (^7Be mit $\tau=53$ d, ^{11}C , ^{11}N , ^{13}N , ^{15}O [Bau95]) im Wasserkreislauf. Die Reinigung des Kühlwassers aufgrund der Korrosion des Targets und des gesamten Kühlwasserkreislaufes durch die ständige Ionisation würde einen erheblichen Aufwand erfordern.

Damit tritt das Problem der Schockwellen aber immer noch an den Behälterwänden auf. Hier hofft man, daß sie den Belastungen standhalten, wenn Gasbläschen durch das Target geleitet werden und so eine Reduzierung der mechanischen Spannungsspitzen herbeigeführt wird.

Quecksilber wurde anstelle von flüssigem Blei gewählt:

- ^{199}Hg (16,8%) hat einen hohen Absorptionsquerschnitt für langsame Neutronen (2000 b). Das ist der Hauptgrund, warum es nicht schon früher als Target in Betracht gezogen wurde. Für eine Kurzpulsquelle ist es aber ein entscheidender Vorteil, da die langsamen Neutronen den Puls unerwünschtermaßen verlängern würden.
- Quecksilber ist bei Raumtemperatur flüssig, es werden keine Heizkreisläufe benötigt.

Berechnungen [ESS96] ergaben für das Hg-Target eine um 30% höhere Neutronenausbeute als mit einem wassergekühlten Ta-Target erreicht werden kann.

Die Reaktionen der Protonen beschränken sich aber nicht nur auf das Targetmaterial. Insbesondere ist zu beachten, daß es auch Reaktionen im sogenannten Fenster gibt. Das Fenster ist die Vakuumdichtung zwischen Protonenspeicherring und Targetbereich und wird 4 mm dick sein. In diesem Fenster sowie in den Wänden des Targetbehälters werden durch Spallationsreaktionen unter anderem Protonen (Deuteronen, Tritonen) und α -Teilchen erzeugt, es kommt zur Bildung von gasförmigem Wasserstoff und Helium.

Als Material kommen austenitische und martensitische Stähle in Frage. Wasserstoff kann aus diesen Materialien herausdiffundieren, Helium allerdings nicht [Ull97] (bei Temperaturen $< 250^\circ\text{C}$). Durch Anreicherung von Helium wird das Fenster spröde und brüchig, es muß in regelmäßigen Abständen ausgetauscht werden. Die erwartete Lebensdauer beträgt ca. ein Jahr. Es ist jedoch nicht bekannt, wie hoch die Heliumproduktion tatsächlich ist. Zu deren Bestimmung werden Modellrechnungen mit verschiedenen Codes durchgeführt, deren Validierung durch Messungen allerdings noch aussteht.

1.3 Motivation

Die Motivation zur Untersuchung von Spallationsreaktionen hat vor allem zwei Aspekte:

- einen angewandten im Zusammenhang mit der Entwicklung von intensiven Spallationsneutronenquellen, insbesondere dem ESS-Projekt, sowie

- einen fundamentalen, kernphysikalischen Aspekt, der Untersuchung der Anregung schwerer Kerne und deren Abkühlung und Zerfallseigenschaften.

Beide Aspekte rechtfertigen, sich erneut mit der Untersuchung von Spallationsreaktionen zu beschäftigen.

Für das Design von Spallationsneutronenquellen werden moderne Hochenergie-Transportcodes benutzt, zu deren sorgfältiger Validierung man wesentlich detailliertere Daten benötigt, als vorhanden sind. Die beim Studium der Spallationsreaktionen gewonnenen Erkenntnisse der Zerfallseigenschaften können auch einen Beitrag zu neueren Untersuchungen von Schwerionenreaktionen leisten, welche die Zerfallseigenschaften sehr hoch angeregter Kernmaterie untersuchen. Außerdem erlaubt der Fortschritt, der bei der experimentellen Technik im Vergleich zu den frühen Spallationsexperimenten gemacht wurde, einen tieferen Einblick in die Abläufe der Spallationsreaktionen selbst sowie in die Dynamik und Zeitskalen der nuklearen Fragmentation.

Es liegen zwar Daten, auch über die Heliumproduktion in Spallationsreaktionen aus früheren Arbeiten vor, allerdings unterscheiden sich die Angaben so sehr voneinander, daß keine verlässlichen Aussagen möglich sind. In der Abbildung 1.3 sind Helium-Produktionswirkungsquerschnitte für protoneninduzierte Spallationsreaktionen als Funktion der Protonenenergie zusammengefaßt. Der erste Autor und das Jahr der Publikation der Ergebnisse sind angegeben [Sch59, Bie62, Goe64, Gre88, Mic95].

In den meisten der früheren Experimente wurde die Heliumproduktion aus Helium-Gas-Messungen abgeleitet. Dabei wurde in der Reaktion erzeugtes Helium, welches im Targetmaterial verbleibt, bei Temperaturen von über 1000 °C im Hochvakuum ausgegast. In einem nachgeschalteten Massenspektrometer wurde die Masse und damit das Isotop getrennt und quantitativ bestimmt. Die Zahl der Protonen im Protonenstrahl wurde durch die Messung der Aktivierung von Al-Monitorfolien bestimmt, die sich zwischen verschiedenen Schichten von Targetmaterial befinden.

NESSI² ist das in dieser Arbeit beschriebene Experiment. Mit der Technik, die dabei eingesetzt wird, ist es möglich, jedes das Target verlassende leichte geladene Teilchen direkt über Flugzeit und kinetische Energie zu identifizieren³ und die entstehenden Neutronen sowie die Protonen des Strahles einzeln zu zählen. Dadurch ist es auch möglich, Energiespektren, Anregungsenergie- und Winkelverteilungen zu messen.

²NEutron Szintillator tank and SIlicon ball

³Bei schwereren Teilchen ist zumindest die Unterscheidung nach Gruppen möglich: Intermediäre Fragmente mit Massen zwischen 5 und 25, Spaltfragmente und schwere Verdampfungsrestkerne.

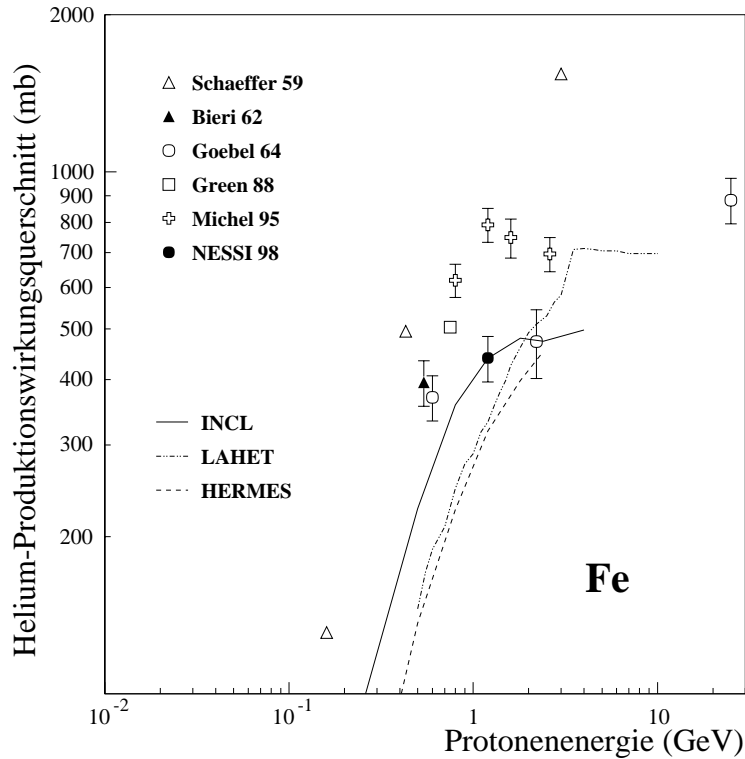


Abbildung 1.3: Experimentelle Helium-Produktionswirkungsquerschnitte für protoneninduzierte Spallationsreaktionen. Die Linien sind die Ergebnisse von Rechnungen mit den Codes INCL, HERMES und LAHET, auf die in Kapitel 3 und 4 eingegangen wird.

Wir haben am Protonenspeicherring COSY (siehe Abschnitt 2.1) in Jülich ein Experiment mit 1,2 GeV und ein zweites mit 1,8 GeV Protonenenergie im Rahmen der NESSI-Kollaboration durchgeführt. Beide Energien wurden nahe der Referenzenergie der ESS von 1,334 GeV gewählt. In dieser Arbeit wird die experimentelle Methode der Messung von geladenen Teilchen und Neutronen beschrieben. Die Ergebnisse werden mit anderen Experimenten und Rechnungen verglichen.

Abschließend sei erwähnt, daß mit einem Beschluß zum Bau der Europäischen Spallationsquelle nicht vor dem Ende der Entwicklungsphase 2001 zu rechnen ist. Etwa 10 Jahre nach einem positiven Bescheid könnte ESS den Betrieb aufnehmen.