

51

Int. Cl. 2:

G 01 T 3-00

19 BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



DT 23 55 695 A1

11

# Offenlegungsschrift 23 55 695

21

Aktenzeichen: P 23 55 695.8

22

Anmeldetag: 7. 11. 73

43

Offenlegungstag: 22. 5. 75

30

Unionspriorität:

32 33 31

54

Bezeichnung: Aktivierungsneutronendetektor

71

Anmelder: Institut fiziki Akademii Nauk Grusinskoj SSR, Tbilisi (Sowjetunion)

74

Vertreter: Beetz sen. R., Dipl.-Ing.; Lamprecht, K., Dipl.-Ing.; Beetz jun. R., Dr.-Ing.; Pat.-Anwälte, 8000 München

72

Erfinder: Ambardanischwili, Tristan Silowanowitsch;  
Kolomijzew, Michail Alexandrowitsch; Tbilisi;  
Sacharina geb. Maschtschenko, Tamara Jakowlewna, Grusinskaja;  
Dundua, Wachtang Justinowitsch;  
Tschichladse geb. Patschulija, Ninel Wladimirowna; Tbilisi (Sowjetunion)

56

Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht zu ziehende Druckschriften:

DT-AS 12 08 829

DT-AS 14 64 953

DT-AS 15 64 046

GB 12 45 917

FR 13 15 941

FR 13 15 942

DT 23 55 695 A1

2355695

530-21.644P

7. 11. 1973

Institut Fiziki Akademii Nauk Gruzinskoj SSR, Tbilisi (UdSSR)

### Aktivierungsneutronendetektor

Die Erfindung bezieht sich auf die Neutronendosimetrie, insbesondere auf einen Aktivierungsneutronendetektor.

Die Aktivierungsneutronendetektoren werden zur Messung von Integralströmen thermischer und schneller Neutronen während der Dauer der Bestrahlung einer Probe sowie zur Messung der Intensitäten von Neutronenfeldern verwendet.

509821/0414

530-(P49 259/2)-Hd-r (8)

In der nachfolgenden Beschreibung versteht man unter dem Aktivierungsneutronendetektor einen Detektor, der ein unter der Einwirkung von Neutronen radioaktiv werdendes Material darstellt (kurz neutronenaktivierbares Material genannt), das neutronenempfindliche Elemente enthält, deren Radioaktivität nach der Bestrahlung mittels den für die Messung ionisierender Teilchen bestehenden Methoden gemessen werden kann, wobei der Neutronenstrom nach den erhaltenen Angaben in dem Punkt, wo die Bestrahlung des Meßfühlers erfolgte, berechnet werden kann.

Es sind Aktivierungsneutronendetektoren bekannt, die als Material des Detektorelements chemisch reine Elemente enthalten. Solche Aktivierungsdetektoren verwendet man in Form von Tabletten, dünnen Folien, Drähten, auf eine neutroneninerte Unterlage aufgestäubten Filmen und in Form von Gemischen mit einem polymeren Bindemittel.

Es ist auch ein Aktivierungsneutronendetektor bekannt, der eine geformte und gehärtete Mischung darstellt, die aus einem neutronenaktivierbaren Element besteht, das im Volumen eines neutroneninerten gehärteten Kondensationsharzes verteilt ist.

Die genannten Detektoren besitzen Nachteile. Alle diese Detektoren enthalten jeweils ein neutronenempfindliches Element, das nach der Bestrahlung die Quelle der Information über die Parameter des Neutronenfeldes ist.

Im Zusammenhang damit erhält man bei der Bestrahlung eines Detektors und der nachfolgenden Messung seiner Radioaktivität in Ab-

hängigkeit von dem jeweiligen neutronenempfindlichen Element Aussagen entweder über den Strom der thermischen Neutronen an der Bestrahlungsstelle oder über das Integralspektrum der schnellen Neutronen mit einer Energie, die höher ist als die effektive Schwellenenergie für dieses im Detektor enthaltene neutronenempfindliche Element.

Die Rekonstruktion des Spektrums der schnellen Neutronen mit Hilfe der genannten Detektoren erfolgt durch ihre aufeinanderfolgende Bestrahlung und Messung der Radioaktivität.

"Sandwiches", erhalten durch Aufeinanderlegen individueller Detektoren mit verschiedenen neutronenempfindlichen Elementen, werden nicht angewandt, weil sich die einzelnen Elemente in diesen unter gegenüber den Neutronen nicht gleichwertigen Bedingungen befinden. In diesem Fall liegen die inneren Schichten der "Sandwiches" in einem neutronenarmen Strom infolge einer teilweisen Absorption der Neutronen durch die äußeren Detektoren. Das Gesagte trifft auf die Detektoren aller genannten Typen zu. Außerdem schmelzen einige weitgehend angewandte Detektoren, z. B. solche mit Schwefel, Phosphor oder anderen Elementen, leicht, sind entzündbar und besitzen keine ausreichende Festigkeit.

In den Detektoren, die eine geformte und gehärtete Mischung darstellen, welche eine feste Lösung des neutronenempfindlichen Elementes in Polykondensationsharz ist, kommt es außerdem zur Thermalisierung der schnellen Neutronen an den Atomkernen des in dem Harz enthaltenen Wasserstoffes.

2355695

Dieser Effekt macht die Anwendung von "Sandwiches", erhalten durch Aufeinanderlegen einzelner Detektoren auf der Basis von Polykondensationsharz, unmöglich.

Andererseits ist es in vielen Fällen notwendig, mit Hilfe eines bestrahlten Detektors Information gleichzeitig über den Strom der thermischen und schnellen Neutronen oder über das Spektrum der schnellen Neutronen zu erhalten.

Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, unter Vermeidung der genannten Nachteile einen neuen Aktivierungsneutronendetektor zu entwickeln, der eine geformte und gehärtete Mischung darstellt, die mehrere neutronenempfindliche Elemente enthält, die sich in der Mischung unter gegenüber Neutronen gleichwertigen Bedingungen befinden.

Diese Aufgabe wird bei einem Aktivierungsneutronendetektor, der eine geformte und gehärtete Mischung darstellt, die aus einem neutronenaktivierbaren Material besteht, das im Volumen eines wärmehärtbaren neutroneninerten Polykondensationsharzes verteilt ist, erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß die Mischung ein aktivierbares Material enthält, das mindestens aus zwei chemischen Elementen und/oder einer Verbindung aus mindestens zwei chemischen Elementen besteht, deren jedes unter Bildung radioaktiver Isotope neutronenaktivierbar ist, die unterschiedliche Zerfalls-Strahlungsenergien besitzen.

Eine bevorzugte Variante für die Messung hoher Integralneu-

509821/0414

tronenströme bis  $10^{20}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> sind Detektoren, die eine geformte und gehärtete Mischung darstellen, die aus der festen Lösung eines bei Neutronenbestrahlung ein langlebiges Isotop liefernden neutronenempfindlichen Elementes und Pulver eines Oxids eines neutronenempfindlichen Elementes vom Schmelzpunkt über 300 °C, aus dem sich unter der Einwirkung der schnellen Neutronen ein kurzlebige radioaktives Isotop bildet, besteht. Die sich dabei unter der Einwirkung von Neutronen bildenden Isotope weisen eine unterschiedliche Strahlungsenergie beim Zerfall auf und können getrennt gemessen werden.

Es ist möglich, Detektoren, die eine geformte und gehärtete Mischung darstellen, welche als neutronenaktivierbares Material Aluminiumoxid enthält, für die Messung von Integralströmen schneller Neutronen in harten Neutronenspektren zu verwenden.

Zweckmäßig sind Detektoren, die in ihrer Mischung Magnesiumoxid als neutronenaktivierbares Material enthalten.

Es ist zweckmäßig, daß die Mischung eine feste Lösung eines Salzes, das durch das Metall Kobalt, Nickel oder Eisen und einen neutroneninerten Säurerest gebildet ist, im Polykondensationsharz in Gemisch mit Aluminiumoxid darstellt.

Wenn der Detektor in seiner Mischung Aluminiumoxid und Kobaltsalz enthält, erhält man bei der Messung der Radioaktivität eine Aussage über den Integralstrom der thermischen Neutronen.

Enthält der Detektor in seiner Mischung Aluminiumoxid und Salze von Nickel und Eisen, so erhält man bei der Messung der Radioaktivität eine Aussage über den Integralstrom der schnellen Neutronen mit niedrigeren Schwellenenergien als beim Aluminium.

Es ist auch vorteilhaft, daß die Mischung eine feste Lösung eines Salzes, das durch das Metall Kobalt, Nickel oder Eisen und einen neutroneninerten Säurerest gebildet ist, im Polykondensationsharz in Gemisch mit Magnesiumoxid darstellt.

Ein Ersatz eines Teils des Polykondensationsharzes in der Mischung des Detektors durch ein Metalloxid senkt den Wasserstoffgehalt der Mischung und schwächt folglich die Thermalisierung schneller Neutronen ab. Das Vorliegen von Metalloxid in der polymeren Mischung erhöht auch die Strahlungsbeständigkeit auf  $10^{20}$  Neutronen/cm<sup>2</sup>.

Es ist auch zweckmäßig, daß die Mischung eine feste Lösung eines Salzes, das durch das Metall Indium oder Quecksilber und einen neutroneninerten Säurerest gebildet ist, in einem Copolymerisat von Phenolformaldehyd-Resolharz mit m-Chlorphenol-Formaldehydharz in Kombination mit einem Gemisch der Oxide von Aluminium, Nickel, Eisen und Thallium darstellt.

Man verwendet zweckmäßig m-Chlorphenol-Formaldehydharz mit einem Chlorgehalt von 5 Gew.-%.

Dabei ist es zweckmäßig zur Erzielung einer ungefähr gleich-

großen Aktivität der verschiedenen Isotope, daß die Komponenten in der Mischung in folgendem Verhältnis (in Gewichtsteilen) enthalten sind:  $\text{Al}_2\text{O}_3 = 15$ ;  $\text{Ni}_2\text{O}_3 = 10$ ;  $\text{Fe}_2\text{O}_3 = 3$ ;  $\text{Tl}_2\text{O} = 1$ ;  $\text{Hg}(\text{NO}_3)_2 = 0,1$ ;  $\text{In}(\text{NO}_3)_3 = 0,03$ ; Copolymerisat von Phenolformaldehyd-Resolharz mit m-Chlorphenol-Formaldehydharz = 10.

Einen solchen Detektor verwendet man zweckmäßig zur Rekonstruktion des Spektrums schneller Neutronen durch Auswertung der Angaben, die nach der Messung des  $\gamma$ -Spektrums der Isotope mittels eines Mehrkanal-Impulsanalysators mit einem Halbleitergeber mit einer Nachweisempfindlichkeit von  $\sim 2$  bis 5 keV erhalten sind.

Zur Herstellung eines Aktivierungsdetektors, bei dem die Messung des  $\gamma$ -Spektrums nach der Bestrahlung auf einer einfacheren Mehrkanalapparatur unter Verwendung eines Szintillationskristalls vom Typ NaJ(Tl) als Geber durchgeführt werden kann, verwendet man zweckmäßig eine derartige Mischung, daß die Mischung eine feste Lösung von Indiumnitrat im Polykondensationsharz in Kombination mit einem Gemisch von Nickeloxid und Aluminiumoxid darstellt. Man wählt zweckmäßig in einem solchen Detektor zur Erzielung einer ungefähr gleichgroßen Aktivität der verschiedenen Isotope nach dessen Bestrahlung im Spektrum der Uranspaltung folgendes Verhältnis der Komponenten: Nickeloxid = 25 Gewichtsteile, Aluminiumoxid = 40 Gewichtsteile, Indiumnitrat = 2,5 Gewichtsteile, Polykondensationsharz = 50 Gewichtsteile.

Es ist auch möglich, daß das neutronenaktivierbare Material feindisperses Pulver von Quecksilbersulfid oder Eisensulfid enthält.



Einen solchen Aktivierungsneutronendetektor verwendet man zweckmäßig als wärmebeständigen Doppelschwellen-Detektor.

Die Radioaktivität des Detektors, der in seiner Mischung Eisensulfid enthält, mißt man nach seiner Bestrahlung über die Aktivität von Mn 56 bezüglich der  $\gamma$ -Strahlung, und nach dem Zerfall von Mn 56 mißt man die Aktivität von P 32 bezüglich der  $\beta$ -Strahlung.

Den Detektor, der in der Mischung Quecksilbersulfid enthält, verwendet man ebenfalls als Doppelschwellen-Detektor mit Quecksilber und Schwefel. Dabei haben die neutronenempfindlichen Elemente Quecksilber und Schwefel, die in freier Form leicht schmelzen und sich verflüchtigen, in der genannten Mischung in Gemisch mit dem Polykondensationsharz eine Wärmebeständigkeit bis 250 °C, während die leichteste Preßbarkeit und die höchste Festigkeit des Detektors beim folgenden Verhältnis der Komponenten gewährleistet wird: Quecksilbersulfid = 80 Gewichtsteile, Polykondensationsharz = 20 Gewichtsteile.

Zur Messung der Temperatur von Neutronengas verwendet man einen Detektor, der eine geformte und gehärtete Mischung ist, die eine feste Lösung eines Salzes, gebildet durch Lutetium und einen neutroneninerten Säurerest, im Polykondensationsharz in Gemisch mit rotem Phosphor darstellt.

Man verwendet auch einen Detektor, in welchem das Verhältnis der Komponenten in der Mischung wie folgt ist: roter Phosphor =

2355695

25 Gewichtsteile, Lutetiumnitrat = 2 Gewichtsteile, Polykondensationsharz = 73 Gewichtsteile.

Die Zugabe neuer neutronenempfindlicher Elemente zum bekannten Aktivierungsneutronendetektor bewirkt eine Verminderung der Thermalisierung der schnellen Neutronen in dem Detektor und vergrößert den Informationsumfang über die Parameter des Neutronenfeldes. Dabei wächst die Strahlungsbeständigkeit des Detektors.

Die geometrischen Abmessungen des Detektors, der mehrere chemische Elemente enthält, bleiben geeignet zur Anwendung.

Diese Eigenschaften der Detektoren machen es möglich, deren Anwendungsbereich zu erweitern.

Der erfindungsgemäße Aktivierungsneutronendetektor wird wie folgt hergestellt:

Man bereitet eine alkoholische Lösung eines wärmehärtbaren Polykondensationsharzes. Der genannten Lösung setzt man eine alkoholische Lösung von Salzen neutronenaktivierbarer Metalle mit neutroneninerten Säureresten zu. Das Gemisch verrührt man intensiv und destilliert aus diesem den Alkohol ab. Man erhält dabei eine Resolmasse sirupähnlicher Konsistenz, die eine Lösung der genannten Salze im Resol darstellt. Die Resolmasse wird zum Teil unter einem Vakuum von etwa 10 bis 50 Torr bei einer Temperatur von etwa 80 °C während 2 bis 3 Stunden bis zur Erzielung eines schmelzbaren unlöslichen Zustandes, der unter der Bezeichnung

509821/0414

2355695

Resitol bekannt ist, ausgehärtet. Das erhaltene porige Resitol kühlt man auf Zimmertemperatur ab und mahlt man zu Pulver, aus dem Tabletten unter einem Druck von 200 bis 2000 kp/cm<sup>2</sup> gepreßt werden. Diese Tabletten bringt man in einen Thermostaten und hält man bei einer Endtemperatur von etwa 120 bis 150 °C während 3 Stunden, wodurch sie zu einem nichtschmelzbaren unlöslichen Zustand, nämlich Resit, aushärten. Dabei gewinnen sie einen glasartigen Aufbau und eine hohe mechanische Festigkeit.

Falls den Detektoren Pulver der freien Elemente, Osid bzw. Sulfide von Eisen oder Quecksilber zugegeben sind, die alkoholunlöslich sind, werden diese Pulver mechanisch mit alkoholischer Lösung entweder von Resol oder von Resol mit den darin gelösten Salzen vermischt, wonach die Verarbeitung des Gemisches zu Tabletten wie oben ausgeführt fortgesetzt wird.

Durch eine derartige Technologie wird eine gleichmäßige Verteilung der Salze solcher neutronenempfindlicher Elemente gewährleistet, deren Gehalt im Detektor nach den Aktivierungsbedingungen dieser Elemente und den Meßbedingungen der Aktivität der gebildeten Isotope gering sein soll.

Die Abweichung des Konzentrationswertes der Elemente in den einzelnen Detektoren eines Loses von dem mittleren Wert übersteigt nicht 0,3 bis 0,5 %.

Zum besseren Verstehen der Erfindung werden Ausführungsbeispiele für die Herstellung einzelner Aktivierungsneutronendetektoren angeführt.

509821/0414

2355695

Beispiel 1

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, deren Material aus einer festen Lösung von Indiumnitrat und Nickelnitrat im Phenolformaldehyd-Resolharz besteht. In dieser Mischung sind diese zusammensetzenden Komponenten in folgendem Verhältnis enthalten: Indiumnitrat = 0,5 Gewichtsteile; Nickelnitrat = 15 Gewichtsteile; Phenolformaldehyd-Resolharz = 84,5 Gewichtsteile.

Ein solcher Detektor wird wie folgt hergestellt:

0,5 Gewichtsteile  $\text{In}(\text{NO}_3)_3$  und 15 Gewichtsteile  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_3$  bringt man in einen Kolben ein, dem man 200 Gewichtsteile Rektifikatäthanol zuführt, und man erhitzt den Inhalt bis zur vollständigen Auflösung. Die erhaltene Lösung filtriert man durch ein poriges Glasfilter ab, bringt das Filtrat in einen Rundkolben ein und trägt in diesen 169 Gewichtsteile 50prozentige Lösung von Phenolformaldehydresol in Äthanol ein. Den Alkohol destilliert man aus dem Gemisch unter Vakuum ab, erhitzt die erhaltene homogene Resolmasse unter einem Vakuum von etwa 50 Torr bei einer Temperatur von etwa  $80^\circ\text{C}$  während 3 Stunden. Dabei härtet die Resolmasse zum Teil aus, indem sie in den Resitolzustand übergeht. Dieses Resitol mahlt man nach der Abkühlung auf Zimmertemperatur zu Pulver und preßt aus diesem unter einem Druck von 200 bis  $2000 \text{ kp/cm}^2$  Tabletten, die endgültig gehärtet werden, indem man sie in den Resitzustand bei einer Temperatur von etwa  $150^\circ\text{C}$  überführt.

509821/0414

2355695

Die erhaltenen Tabletten besitzen eine hohe mechanische Festigkeit (Mikrohärte etwa  $30 \text{ kp/m}^2$ ), eine Wärmebeständigkeit bis  $250^\circ\text{C}$  und eine Strahlungsbeständigkeit bis zu einem Integralstrom schneller Neutronen von etwa  $10^{19} \text{ Neutronen/cm}^2$ .

Da das Detektormaterial eine feste molekulare Lösung von Indium- und Nickelsalz in Resol darstellt, wird eine homogene Verteilung dieser Elemente im Harz gewährleistet, wobei sich die einzelnen Detektoren aus einem Los nach dem Anteil verschiedener Elemente nicht unterscheiden.

Bei einem Durchmesser der Detektortablette von etwa 8 mm und einer Dicke von etwa 1,5 mm weist sie ein Gewicht von etwa 100 mg auf.

Nach Bestrahlung mit einem Integralstrom schneller Neutronen von etwa  $10^{16} \text{ Neutronen/cm}^2$  hält man den Detektor während etwa 24 Stunden und mißt dann seine Aktivität auf einem Mehrkanalimpulsanalysator. Dabei verwendet man Meßfühler für die getrennte Bestimmung der Aktivität der Isotope In 115 m und Co 58, die sich aus Indium bzw. Nickel gebildet haben, den Szintillationskristall NaJ(Tl).

Nach der Aktivität von In 115 m berechnet man den Integralstrom der schnellen Neutronen mit einer Energie von über 1,15 MeV und nach der Aktivität von Co 58 den Intergralstrom der schnellen Neutronen mit einer Energie von über 2,55 MeV.

509821/0414

2355695

Somit erhält man bei der Bestrahlung eines Detektors Information über den Integralneutronenstrahl mit den zwei genannten Energien.

### Beispiel 2

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, deren Material aus einer festen Lösung eines Gemisches beliebiger Nitrate in Phenolformaldehyd-Resolharz besteht. Dabei ist jedes der Metalle ein Schwellendetektor, der unter der Einwirkung schneller Neutronen ein  $\gamma$ -radioaktives Isotop mit unterschiedlichen Energien der Photopeaks bildet.

Die Gesamtmenge aller Salze im Harz, bezogen auf das Metall, übersteigt nicht 3 Gew.-% des Harzes.

Ein solcher Detektor kann nach der Technologie des Beispiels 1 hergestellt werden.

Nach der Bestrahlung mit einem Strom schneller Neutronen mißt man die Aktivität des Detektors auf einem Mehrkanalanalysator mit einem Geber, der es ermöglicht, alle Photopeaks der gebildeten radioaktiven Isotope aufzulösen. Nach den bei der Messung der Aktivität eines solchen Detektors erhaltenen Aktivierungsangaben wird das Spektrum der schnellen Neutronen an der Bestrahlungsstelle rekonstruiert.

509821/0414

2355695

### Beispiel 3

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, deren Material aus einer festen Lösung eines Gemisches von Azetaten beliebiger Elemente in Anilin-formaldehydharz besteht. Im übrigen unterscheidet sich der Detektor von dem in Beispiel 2 beschriebenen nicht.

### Beispiel 4

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, deren Material ein Konglomerat von Pulvern von Verbindungen der neutronenempfindlichen Elemente und einer festen Lösung der Salze der neutronenempfindlichen Elemente in einem polymeren Gemisch darstellt, das aus 2 Gewichtsteilen Phenolformaldehyd-Resolharz und 1 Gewichtsteil Phenolbenzaldehyd-Novolakharz besteht. Als Pulver verwendete man elementaren Schwefel. Die feste Lösung enthält Eisennitrat. Das Verhältnis der Komponenten in einem solchen Detektor ist wie folgt: polymeres Gemisch = 25 Gewichtsteile; Eisennitrat = 4 Gewichtsteile; elementarer Schwefel = 71 Gewichtsteile.

Nach der Bestrahlung mit einem Strom schneller Neutronen mißt man die Aktivität von Mn 56, das sich aus dem Eisen nach der Kernreaktion  $\text{Fe } 56 (n, p) \text{ Mn } 56$  gebildet hat, und dann nach dem Zerfall von Mn 56 nach Ablauf von 48 Stunden mißt man die Akti-

509821/0414

2355695

vität von P 32, der sich nach der Reaktion  $S\ 32\ (n, p)\ P\ 32$  gebildet hat.

Nach diesen Angaben berechnet man die Ströme der schnellen Neutronen an der Bestrahlungsstelle.

#### Beispiel 5

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, deren Material ein Konglomerat von Metalloxid und einer festen Lösung von Metallnitraten ist.

Gegebenenfalls spielen die Oxide eine komplexe Rolle. Die in diesen enthaltenen Metalle sind nämlich neutronenempfindlich und dienen folglich dazu, Information über den Neutronenstrom zu erhalten; die Oxide erhöhen die Strahlungsbeständigkeit der festen Lösung von Salzen im Polymeren bis zu einem Integralneutronenstrom von etwa  $10^{20}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> gegenüber  $10^{19}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> für Mischungen, die keine Oxide enthalten; der hohe Gehalt an Oxiden schwächt die Thermalisierung der schnellen Neutronen an den Kernen des in dem Harz enthaltenen Wasserstoffs ab.

In der Tabelle sind Zusammensetzungen einiger Detektormischungen angeführt, die Metalloxide und feste Lösungen anderer Elemente im Phenolformaldehyd-Resolharz enthalten.

509821/0414



2355695

Tabelle

Zusammensetzung der Detektoren, die Metalloxide und feste Lösung anderer Elemente im Phenolformaldehydharz enthalten

Oxide	Oxidgehalt	Harzgehalt	Gehalt an anderen Elementen in der festen Lösung im Harz
$\text{TiO}_2$	50 Gewichtsteile	49 Gewichtsteile	$\text{Zn}(\text{NO}_3)_2 =$ 1 Gewichtsteil
$\text{Al}_2\text{O}_3$	80 Gewichtsteile	19,9 Gew.-Teile	$\text{Co}(\text{NO}_3)_2 =$ 0,1 Gewichtsteile
$\text{Al}_2\text{O}_3$	80 Gewichtsteile	18,9 Gew.-Teile	$\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 =$ 1,1 Gewichtsteile
$\text{MgO}$	90 Gewichtsteile	9,99 Gew.-Teile	$\text{Co}(\text{NO}_3)_2 =$ 0,01 Gew.-Teile

Diese oxidhaltigen Detektoren verwendet man zweckmäßig als Monitoren zum Begleiten von Proben, die mit Integralneutronenströmen von etwa  $10^{20}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> bestrahlt werden.

509821/0414

Beispiel 6

Der Aktivierungsneutronendetektor besitzt die gleiche Zusammensetzung an neutronenempfindlichen Materialien wie auch im Beispiel 5, man verwendet jedoch als Polykondensationsharz Melaminformaldehydharz. Nach seinen Eigenschaften unterscheidet sich der Detektor von dem im Beispiel 5 beschriebenen Detektor nicht.

Beispiel 7

Der Aktivierungsneutronendetektor besitzt die gleiche Zusammensetzung an neutronenempfindlichen Materialien wie auch in Beispiel 5, man verwendet jedoch als Polykondensationsharz Resorzinformaldehydharz. Die Eigenschaften dieses Detektors unterscheiden sich von den Eigenschaften des im Beispiel 5 beschriebenen Detektors nicht.

Beispiel 8

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, deren Material ein Konglomerat von Aluminiumoxid und einer festen Lösung von Nickelazetat im Phenolformaldehyd-Resolharz darstellt. Die Komponenten sind in folgendem Verhältnis enthalten: Phenolformaldehyd-Resolharz = 10 Gewichtsteile; Aluminiumoxid = 89,5 Gewichtsteile; Nickelazetat = 0,5 Gewichtsteile.

2355695

Ein solcher Detektor kann wie folgt bereitet werden:

40 Gewichtsteilen einer 25prozentigen Resollösung gibt man 0,5 Gewichtsteile Nickelazetat, gelöst in Alkohol, zu. Diesem Gemisch gibt man feindisperses Pulver von chemisch reinem Aluminiumoxid in einer Menge von 89,5 Gewichtsteilen zu. Das Gemisch wird intensiv verrührt und aus diesem Alkohol bei einer Temperatur von etwa 60 bis 70 °C eingedampft. Den erhaltenen Rückstand kühlt man auf Zimmertemperatur ab, mahlt diesen zu Pulver und siebt ihn durch ein Sieb mit einer Siebmaschenweite von höchstens 100 µm. Aus diesem Pulver preßt man Tabletten, die bei einer Temperatur von etwa 150 °C endgültig ausgehärtet werden. Die nach dem Erhärten erhaltenen Tabletten sind Detektoren, welche man zweckmäßig zur Ermittlung der Integralströme schneller Neutronen verwendet.

#### Beispiel 9

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, deren Material ein Konglomerat von Magnesiumoxid und einer festen Lösung von Kobaltpropionat im Phenolformaldehyd-Resolharz darstellt.

Die Komponenten sind im Detektor in folgendem Gewichtsverhältnis enthalten: Magnesiumoxid = 74,995 Gewichtsteile; Kobaltpropionat = 0,005 Gewichtsteile; Phenolformaldehydharz = 25 Gewichtsteile.

509821/0414

2355695

Ein derartiger Detektor wird wie folgt hergestellt:

In 50 Gewichtsteile 50prozentiger alkoholischer Lösung von Phenolformaldehyd-Resolharz trägt man 0,005 Gewichtsteile Kobaltpropionat in Form alkoholischer Lösung ein. Aus dem erhaltenen Gemisch entfernt man den Alkohol und mahlt den Rückstand nach der in Beispiel 1 beschriebenen Technologie zu Pulver. Das erhaltene Resitolpulver vermischt man mit 74,995 Gewichtsteilen Pulver von chemisch reinem Magnesiumoxid, wonach man aus dem Gemisch Tabletten preßt, die bei einer Temperatur von  $150^{\circ}\text{C}$  während 2 bis 3 Stunden gehärtet werden.

Den Detektor verwendet man zur Ermittlung von Integralströmen schneller Neutronen von  $10^{20}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> bei einer Temperatur bis  $300^{\circ}\text{C}$  in der Bestrahlungszone.

#### Beispiel 10

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, deren Material ein Konglomerat von Aluminiumoxid und einer festen Lösung von Eisennitrat in Phenolformaldehyd-Resolharz darstellt. Die Detektorkomponenten sind in folgendem Gewichtsverhältnis enthalten: Aluminiumoxid = 97 Gewichtsteile; Eisennitrat = 0,05 Gewichtsteile; Phenolformaldehydharz = 2,95 Gewichtsteile.

509821/0414

2355695

Den Detektor stellt man nach der in Beispiel 1 beschriebenen Technologie her. Der Detektor mißt einen Integralneutronenstrom von  $10^{21}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> bei einer Temperatur bis 1400 °C.

#### Beispiel 11

Die Zusammensetzung des Detektors an neutronenempfindlichen Elementen ist analog zum Beispiel 10, man verwendet jedoch als Polykondensationsharz ein Gemisch von Phenolformaldehyd-Resolharz und Anilinformaldehydharz in einem Verhältnis von 1 : 1. Die Eigenschaften des Detektors sind gleich denen des im Beispiel 10. beschriebenen Detektors.

#### Beispiel 12

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, deren Material ein Konglomerat eines Gemisches von Aluminiumoxid  $Al_2O_3$ , Nickeloxid  $Ni_2O_3$ , Eisenoxid  $Fe_2O_3$  und Thalliumoxid  $Tl_2O$  und einer festen Lösung von Indiumsalz  $In^{3+}$  und Quecksilber  $Hg^{2+}$  mit einem neutroneninerten Säurerest in Kopolymerisat von Phenolformaldehyd-Resolharz mit m-Chlorphenol-Formaldehydharz darstellt.

Die Detektorkomponenten sind in folgendem Gewichtsverhältnis enthalten: Aluminiumoxid = 15 Gewichtsteile; Nickeloxid = 10 Ge-

509821/0414

2355695

wichtsteile; Eisenoxid = 3 Gewichtsteile; Thalliumoxid = 1 Gewichtsteil; Indiumnitrat = 0,03 Gewichtsteile; Quecksilbernitrats = 0,1 Gewichtsteil; Kopolymerisat, 5 Gew.-% Chlor enthaltend, = 10 Gewichtsteile.

Der genannte Detektor wird wie folgt hergestellt:

30 Gewichtsteile Aluminiumoxid, 20 Gewichtsteile Nickeloxid, 6 Gewichtsteile Eisenoxid und 2 Gewichtsteile Thalliumoxid vermischt man mit 20 Gewichtsteilen 25prozentiger alkoholischer Lösung eines Copolymerisats von Phenolformaldehyd-Resolharz mit m-Chlorphenol-Formaldehydharz, das 10 Gew.-% Chlor enthält. Die Masse verrührt man intensiv, wonach man aus dieser den Alkohol abdestilliert und diese zum Resitolzustand aushärtet. Das erhaltene Konglomerat mahlt man bei Zimmertemperatur zu Pulver, das durch ein Sieb mit einer Siebmaschenweite von höchstens 50  $\mu\text{m}$  gesiebt wird. Von diesem Pulver nimmt man 34 Gewichtsteile und vermischt dieses mit 5,13 Gewichtsteilen Pulver, welches eine feste Lösung von 0,1 Gewichtsteilen Quecksilbernitrats und 0,03 Gewichtsteilen Indiumnitrat in 5 Gewichtsteilen Phenolformaldehyd-Resolharz in der Resitolstufe darstellt (die Technologie zur Herstellung fester Lösungen von Salzen in Polykondensationsharz ist im Beispiel 1 beschrieben).

Die Pulver werden intensiv vermischt, wonach das Gemisch zu Tabletten gepreßt und diese bei einer Temperatur von 150 °C ausgehärtet werden.

509821/0414

2355695

Die erhaltenen Detektoren bestrahlt man im Spektrum schneller Neutronen mit einem Integralneutronenstrom von etwa  $10^{17}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> (Detektorgewicht 100 mg).

Dabei werden die Detektoren zum Vermeiden des Beitrags der thermischen Neutronen in hermetische Überzüge eingebracht, die aus metallischem Kadmium ausgeführt sind.

Durch die Bestrahlung kommen unter der Einwirkung von energiereichen Neutronen an den Elementen In, Hg, Ni, Fe, Al, Tl und Cl Schwellenkernreaktionen zustande.

Unter Anwendung einer radiometrischen Mehrkanalapparatur mit Halbleiterkristallen von einem hohen Auflösungsvermögen bestimmt man getrennt die Aktivität jedes der gebildeten Isotope. Die Aktivität von nach der Reaktion  $C\ 35 (n, \alpha) P\ 32$  gebildetem P 32 wird nach der  $\beta$ -Strahlung gemessen.

Nach den erhaltenen Aktivierungsangaben wird das Spektrum der schnellen Neutronen an der Bestrahlungsstelle rekonstruiert.

### Beispiel 13

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, deren Material ein Konglomerat eines Gemisches der Oxide  $Ni_2O_3$  und  $Al_2O_3$  mit einer festen Lösung von Indiumnitrat in Phenolformaldehyd-Resolharz darstellt.

509821/0414

2355695

Das Verhältnis der Komponenten ist wie folgt: Nickeloxid = 25 Gewichtsteile; Aluminiumoxid = 40 Gewichtsteile; Indiumnitrat = 2,5 Gewichtsteile; Phenolformaldehydharz = 50 Gewichtsteile.

Der Detektor wird nach der in Beispiel 12 beschriebenen Technologie hergestellt.

Nach der Bestrahlung des in einen Kadmiumüberzug eingebrachten Detektors mißt man im Spektrum der schnellen Neutronen die Aktivität des Detektors auf einem Mehrkanalimpulsanalysator mit Hilfe des als Geber dienenden Szintillationskristalls NaJ (Tl). Die erhaltenen Angaben liefern ein angenähertes Bild der energetischen Verteilung der schnellen Neutronen in der aktiven Zone des Kernreaktors.

#### Beispiel 14

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, in der die Komponenten in folgendem Gewichtsverhältnis enthalten sind: Aluminiumoxid = 15 Gewichtsteile; Nickeloxid = 10 Gewichtsteile; Eisenoxid = 3 Gewichtsteile; Thalliumoxid = 1 Gewichtsteil; Quecksilberniträt = 0,1 Gewichtsteile; Indiumnitrat = 0,03 Gewichtsteile; Copolymerisat von Phenolformaldehydharz mit m-Chlorphenol-Formaldehydharz, das 2,5 Gew.-% Chlor enthält, = 20 Gewichtsteile.

Nach den Eigenschaften unterscheidet sich der Detektor von dem in Beispiel 12 beschriebenen Detektor nicht.

509821/0414



2355695

Beispiel 15

Der Detektor besitzt die gleiche Zusammensetzung an neutronenempfindlichen Elementen wie auch der in Beispiel 13 beschriebene Detektor, enthält jedoch als Polykondensationsharz Resorzinformaldehyd-Resolharz. Nach den Eigenschaften unterscheidet sich der Detektor von dem in Beispiel 13 beschriebenen nicht.

Beispiel 16

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, deren Material ein Konglomerat von Eisensulfidpulver und Phenolformaldehyd-Resolharz ist.

Das Verhältnis der Komponenten im Detektor ist wie folgt: Eisensulfid = 75 Gewichtsteile; Phenolformaldehydharz = 25 Gewichtsteile.

Den Detektor verwendet man als Doppelschwellendetektor. Dabei mißt man nach der Bestrahlung mit Hilfe eines  $\gamma$ -Quantenanalysators die Aktivität von Mn 56, das sich nach der Kernreaktion  $Fe\ 56\ (n, p)$  Mn 56 gebildet hat, lagert dann den Detektor 24 - 48 Stunden und mißt die Aktivität von nach der Reaktion  $S\ 32\ (n, p)$  P 32 gebildetem P 32 anhand der  $\beta$ -Strahlung.

Den Detektor mit Eisensulfid FeS verwendet man bis zu einer Temperatur von 400 °C an der Luft und bis zu einer Temperatur von 800 °C im Vakuum oder im Medium eines Inertgases.

509821/0414

2355695

Beispiel 17

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, deren Material ein Konglomerat von Quecksilbersulfidpulver und Phenolformaldehyd-Resolharz ist. Das Verhältnis der Komponenten im Detektor ist wie folgt: Quecksilbersulfid = 80 Gewichtsteile; Phenolformaldehydharz = 20 Gewichtsteile.

Den Detektor mit Quecksilbersulfid verwendet man als mechanisch festen und bis zu einer Temperatur von 250 °C wärmebeständigen Doppelschwellendetektor mit Quecksilber und Schwefel.

Beispiel 18

Der Aktivierungsneutronendetektor besitzt das in Beispiel 16 beschriebene Verhältnis der Komponenten, enthält aber als Polykondensationsharz Anilinformaldehydharz. Die Eigenschaften dieses Detektors unterscheiden sich von den Eigenschaften des in Beispiel 16 beschriebenen Detektors nicht.

Beispiel 19

Der Aktivierungsneutronendetektor stellt eine geformte und gehärtete Mischung dar, deren Material ein Konglomerat von Pulver des roten Phosphors und einer festen Lösung von Lutetiumazetat in Phenolformaldehydharz ist.

509821/0414

2355695

Das Verhältnis der Komponenten ist wie folgt: roter Phosphor = 25 Gewichtsteile; Lutetiumazetat = 2 Gewichtsteile; Phenolformaldehydharz = 73 Gewichtsteile. Der Detektor ist betriebsfähig bis zu einer Temperatur von 300 °C und entzündet sich nicht bei Reibung und Stoß. Man verwendet diesen Detektor zweckmäßig zur Ermittlung der Temperatur von Neutronengas.

#### Beispiel 20

Der Aktivierungsneutronendetektor besitzt eine ähnliche Zusammensetzung wie auch der in Beispiel 19 beschriebene Detektor, enthält jedoch als Salz von Lutetium mit einem neutroneninerten Säurerest Lutetiumnitrat  $\text{Lu}(\text{NO}_3)_3$ . Die Eigenschaften des Detektors und seine Verwendung sind analog den Eigenschaften und der Verwendung des in Beispiel 18 beschriebenen Detektors.

#### Beispiel 21

Der Aktivierungsneutronendetektor besitzt eine ähnliche Zusammensetzung wie auch der in Beispiel 18 beschriebene Detektor, enthält jedoch als Polykondensationsharz ein Gemisch, das zu 30 % aus Phenolformaldehyd-Novolakharz und zu 70 % aus Resorzinformaldehydharz besteht.

Detektoren, die eine den in den Beispielen 18 bis 20 beschriebenen ähnliche Zusammensetzung besitzen, verwendet man zur Bestimmung der Temperatur von Neutronengas. Sie sind bis zu einer Temperatur von 300 °C betriebsfähig.

509821/0414

Patentansprüche

1. Aktivierungsneutronendetektor, der eine geformte und gehärtete Mischung darstellt, die aus einem neutronenaktivierbaren Material besteht, das im Volumen eines wärmehärtbaren neutroneninerten Polykondensationsharzes verteilt ist, dadurch gekennzeichnet, daß die Mischung ein aktivierbares Material enthält, das mindestens aus zwei chemischen Elementen und/oder einer Verbindung aus mindestens zwei chemischen Elementen besteht, deren jedes unter Bildung radioaktiver Isotope neutronenaktivierbar ist, die unterschiedliche Zerfalls-Strahlungsenergien besitzen.

2. Detektor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das neutronenaktivierbare Material Oxide neutronenempfindlicher Elemente vom Schmelzpunkt über 300 °C enthält.

3. Detektor nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß das neutronenaktivierbare Material Aluminiumoxid enthält.

4. Detektor nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß das neutronenaktivierbare Material Magnesiumoxid enthält.

5. Detektor nach einem der Ansprüche 1 - 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Mischung eine feste Lösung eines Salzes, das durch das Metall Kobalt, Nickel oder Eisen und einen neutroneninerten

2355695

Säurerest gebildet ist, im Polykondensationsharz in Gemisch mit Aluminiumoxid darstellt.

6. Detektor nach einem der Ansprüche 1 - 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Mischung eine feste Lösung eines Salzes, das durch das Metall Kobalt, Nickel oder Eisen und einen neutroneninerten Säurerest gebildet ist, im Polykondensationsharz in Gemisch mit Magnesiumoxid darstellt.

7. Detektor nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Mischung eine feste Lösung eines Salzes, das durch das Metall Indium oder Quecksilber und einen neutroneninerten Säurerest gebildet ist, in einem Copolymerisat von Phenolformaldehyd-Resolharz mit m-Chlorphenol-Formaldehydharz in Kombination mit einem Gemisch der Oxide von Aluminium, Nickel, Eisen und Thallium darstellt.

8. Detektor nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß das m-Chlorphenol-Formaldehydharz 5 Gew.-% Chlor enthält.

9. Detektor nach Anspruch 7 oder 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponenten in der Mischung in folgendem Verhältnis (in Gewichtsteilen) enthalten sind:  $Al_2O_3 = 15$ ;  $Ni_2O_3 = 10$ ;  $Fe_2O_3 = 3$ ;  $Tl_2O = 1$ ;  $Hg(NO_3)_2 = 0,1$ ;  $In(NO_3)_3 = 0,03$ ; Copolymerisat von Phenolformaldehyd-Resolharz mit m-Chlorphenol-Formaldehydharz = 10.

2355695

10. Detektor nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Mischung eine feste Lösung von Indiumnitrat im Polykondensationsharz in Kombination mit einem Gemisch von Nickeloxid und Aluminiumoxid darstellt.

11. Detektor nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponenten in der Mischung in folgendem Verhältnis (in Gewichtsteilen) enthalten sind:  $\text{Ni}_2\text{O}_3 = 25$ ;  $\text{Al}_2\text{O}_3 = 40$ ;  $\text{In}(\text{NO}_3)_3 = 2,5$ ; Polykondensationsharz = 50.

12. Detektor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das neutronenaktivierbare Material feindisperses Pulver von Quecksilbersulfid oder Eisensulfid enthält.

13. Detektor nach Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponenten in der Mischung in folgendem Verhältnis (in Gewichtsteilen) enthalten sind:  $\text{HgS} = 80$ ; Polykondensationsharz = 20.

14. Detektor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Mischung eine feste Lösung eines Salzes, das durch Lutetium und einen neutroneninerten Säurerest gebildet ist, im Polykondensationsharz in Gemisch mit rotem Phosphor darstellt.

15. Detektor nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponenten in der Mischung in folgendem Verhältnis (in Gewichtsteilen) enthalten sind:  $\text{Lu}(\text{NO}_3)_2 = 2$ ; roter Phosphor = 25; Polykondensationsharz = 73.

509821/0414