

# Neutronenaktivierungsanalyse mit gepulsten 14 MeV Neutronen zur Charakterisierung heterogener radioaktiver Abfälle

Frank Mildenberger



Energie & Umwelt /  
Energy & Environment  
Band / Volume 395  
ISBN 978-3-95806-271-9

 **JÜLICH**  
FORSCHUNGSZENTRUM





Forschungszentrum Jülich GmbH  
Institut für Energie- und Klimaforschung  
Nukleare Entsorgung und Reaktorsicherheit (IEK-6)

# Neutronenaktivierungsanalyse mit gepulsten 14 MeV Neutronen zur Charakteri- sierung heterogener radioaktiver Abfälle

Frank Mildenerger

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 395

---

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-95806-271-9

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek.  
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der  
Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten  
sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Herausgeber  
und Vertrieb:           Forschungszentrum Jülich GmbH  
                                  Zentralbibliothek, Verlag  
                                  52425 Jülich  
                                  Tel.:   +49 2461 61-5368  
                                  Fax:    +49 2461 61-6103  
                                  E-Mail: [zb-publikation@fz-juelich.de](mailto:zb-publikation@fz-juelich.de)  
                                  [www.fz-juelich.de/zb](http://www.fz-juelich.de/zb)

Umschlaggestaltung:   Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Bildnachweis Titelseite: © Thorsten Schier / Fotolia.com

Druck:                    Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright:              Forschungszentrum Jülich 2017

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band / Volume 395

D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2017)

ISSN 1866-1793  
ISBN 978-3-95806-271-9

Vollständig frei verfügbar über das Publikationsportal des Forschungszentrums Jülich (JuSER)  
unter [www.fz-juelich.de/zb/openaccess](http://www.fz-juelich.de/zb/openaccess).



This is an Open Access publication distributed under the terms of the [Creative Commons Attribution License 4.0](https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/),  
which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

*„Die Mathematik allein befriedigt den Geist  
durch ihre außerordentliche Gewißheit.“*

Johannes Kepler

(\*1571 - †1630)



## KURZZUSAMMENFASSUNG

Für den Transport, die Zwischen- und Endlagerung radioaktiver Abfälle wird vorausgesetzt, dass Kenntnisse über das radioaktive und nicht radioaktive stoffliche Inventar vorhanden sind <sup>1</sup>. Um das radioaktive Inventar erfassen zu können, werden sowohl zerstörende (z. B.  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ -Messungen nach nasschemischer Probenaufbereitung) als auch zerstörungsfreie (z. B.  $\gamma$ -Scanning und Neutronenmessungen) radiologischen Messverfahren eingesetzt <sup>2</sup>. Um die nicht radioaktiven Stoffe zerstörungsfrei charakterisieren zu können, wurde ein Prototyp <sup>3</sup> zur Charakterisierung kleinvolumiger (50 l) Proben mittels der Neutronenaktivierungsanalyse mit einer gepulsten 14 MeV Neutronenquelle aufgebaut und parametrisiert. Anschließend wurde in einer Kooperation zwischen der RWTH Aachen und der Forschungszentrum Jülich GmbH das zerstörungsfreie analytische Verfahren MEDINA <sup>4 5</sup> (Multi Element Detection based on Instrumental Neutron Activation) für 200 l Abfallfässer entwickelt.

Diese Arbeit untersucht heterogene Mischproben und charakterisiert diese auf ihre stoffliche Zusammensetzung hin sowie auf ihre inhomogene Verteilung. Zu diesem Zweck wurden Studien zu 200 l Stahlfässer mit heterogenen Matrizen, mittels der NAA in der MEDINA Einrichtung, durchgeführt. Die verwendeten Proben bestehen aus einer Mischung aus Beton und Polyethylen (PE). Das PE kann aufgrund seines hohen Wasserstoffgehalts einen starken Einfluss auf die Neutronenmoderation und -absorption aufweisen und kann hierdurch als mögliche Störgröße bei dem Charakterisierungsprozess des chemotoxischen, nicht radioaktiven Inventars auftreten. Ziel dieser Arbeit ist es, mittels gepulster 14 MeV Neutronen die prompten und verzögerten  $\gamma$ -Strahlen differenziert voneinander zwischen den Neutronenpulsen aufzunehmen und hieraus die Performance des MEDINA-Verfahrens in Bezug auf stark moderierende Mischmatrizes zu studieren.

Zur Optimierung der Akquisition der verzögerten  $\gamma$ -Spektren, ohne eine nennenswerte Interferenz der prompten  $\gamma$ -Strahlung, wurde das Abklingverhalten thermischer Neutronen in Mischmatrizes aus Beton und PE studiert und die Die-Away Time bestimmt. Sie liegt in Abhängigkeit der bestrahlten Matrix zwischen 2 und 5 ms. Hieraus ergibt sich eine Wartezeit für die interferenzfreie Akquisition der verzögerten  $\gamma$ -Strahlung von ca. 12 ms nach den Neutronenpulsen <sup>69</sup>. Des Weiteren wurde mittels der PGNAA der Einfluss der Heterogenität von symmetrischen und asymmetrischen Mischmatrizes aus Beton und PE auf die Quantifizierung der Elementmassen hin untersucht. Die Ergebnisse stimmen mit einer

---

<sup>1</sup> Peter Brennecke (Hrsg.): *Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle (Endlagerungsbedingungen, Stand: Oktober 2010)* – Endlager Konrad – Bundesamt für Strahlenschutz, SE-IB-29/08-REV-1

<sup>2</sup> E. Mauerhofer, R. Odoj: *Messmethoden zur Charakterisierung radioaktiver Abfälle und zur Freimessung von Reststoffen aus der Stilllegung kerntechnischer Anlagen (MESRAB) Lehrstuhl für Werkstoffchemie RWTH Aachen University (März 2006)*

<sup>3</sup> John Kettler: *Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfälle*, Energie & Umwelt - Band 82, ISBN 978-3-89336-665-1; Forschungszentrum Jülich (2010)

<sup>4</sup> E. Mauerhofer, A. Havenith: *The MEDINA facility for the assay of the chemotoxic inventory of radioactive packages* (2014) J Radioanal Nucl Chem Doi 10.1007/s10967-014-3210-2

<sup>5</sup> Andreas Havenith: *Stoffliche Charakterisierung radioaktiver Abfallprodukte durch ein Multi-Element-Analyseverfahren basierend auf der instrumentellen Neutronen-Aktivierungs-Analyse –MEDINA–*; Reihe Energie & Umwelt - Band 248; ISBN 978-3-95806-033-3; Forschungszentrum Jülich GmbH (2014)

Unsicherheit von  $\pm 34\%$  ( $2\sigma$ ) (symmetrische Proben) <sup>70</sup> und  $\pm 35\%$  ( $2\sigma$ ) (asymmetrische Proben) mit den erwarteten Werten überein.

Die Charakterisierung im Hinblick auf die elementare Zusammensetzung symmetrischer Mischmatrizes mittels der CNAA ergab, dass die Ergebnisse mit einer Unsicherheit von  $\pm 39\%$  ( $2\sigma$ ) gut mit den erwarteten Werten übereinstimmen <sup>74</sup>. In diesem Zusammenhang wurden die Nachweisgrenzen für ausgewählte chemotoxische Stoffe in symmetrischen Mischproben bestimmt. Sie liegen für Cadmium zwischen 14 und 24 mg / kg, für Quecksilber zwischen 520 und 740 mg / kg und für Blei zwischen 5,5 und 53 g / kg (Messzeit ca. 30 Minuten) <sup>74</sup>. Zudem wurde die Leistung des MEDINA-Verfahrens für die Quantifizierung einer lokal konzentrierten Elementmasse (Cadmium-Blech) in homogenen Proben und asymmetrischen Mischmatrizes aus Beton und PE untersucht.

Es wurde hierzu ein numerisches Modell zur Quantifizierung, welches die a priori Informationen der PGNAA für die Lokalisation der lokalen Probe nutzt, entwickelt und erfolgreich erprobt. Die Ergebnisse dieser Quantifizierung stimmen für Cadmium in homogenen Matrizen mit einer Unsicherheit von  $\pm 54\%$  ( $2\sigma$ ) mit den erwarteten Werten überein. Des Weiteren wurde der Einfluss von zusätzlichem Eisen (lokale Probe, homogener Eisengehalt und Eisen-Inliner) in der Probenmatrix auf die Bestimmung des Neutronenflusses hin untersucht. Zusätzliche Eisenmassen können identifiziert und deren Einfluss auf die Bestimmung des thermischen Neutronenflusses entsprechend korrigiert werden.

## ABSTRACT

For the transport, interim storage and disposal of radioactive waste, it is assumed to have knowledge of the radioactive and non-radioactive inventory<sup>1</sup>. In order to determine the radioactive inventory destructive (e.g.  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ -measurements according to wet chemical sample preparation) and non-destructive (e.g.  $\gamma$ -scanning and neutron measurements) measurement methods are used<sup>2</sup>. For the characterization of non-radioactive substances a prototype<sup>3</sup> for the assay of small-volume (50 L) samples was constructed and parameterized using the neutron activation analysis (NAA) with a pulsed 14 MeV neutron source. Subsequently, the non-destructive analytical method called MEDINA (Multi Element Detection Based on Instrumental Neutron Activation) for 200 l waste drums was developed in a cooperation between RWTH Aachen University and Forschungszentrum Jülich GmbH<sup>4,5</sup>.

The aim of this thesis is to investigate and characterize heterogeneous mixed samples regarding their material composition as well as their inhomogeneous distribution. For this purposes, studies were carried out on 200 l steel drums with heterogeneous matrices using the NAA in the MEDINA facility. The samples are composed out of a mixture of concrete and polyethylene (PE) bodies. Due to its high hydrogen content, the PE can have a strong influence on the neutron moderation and neutron absorption and can thereby occur as a possible disturbance variable in the characterization of the non-radioactive inventory. For these studies a pulsed 14 MeV neutron source is used to record the prompt and delayed  $\gamma$ -rays between the neutron pulses, separately. Thus, the performance of the MEDINA method relating to strongly moderating mixed matrices and their characterization is studied.

In order to optimize the measurement of delayed  $\gamma$ -rays without any appreciable interference of prompt  $\gamma$ -rays, the decay of thermal neutrons was studied and the thermal neutron die-away time was determined. It ranges between 2 and 5 ms according to the irradiated matrix. For the acquisition of the delayed  $\gamma$ -rays spectra a waiting time of about 12 ms after the end of the neutron pulses is needed<sup>69</sup>. Furthermore, the influence of heterogeneity on the quantification of symmetrical and asymmetrical mixed samples made out of concrete and PE was investigated using prompt gamma neutron activation analysis (PGNAA). The results are consistent with the expected values with an uncertainty of  $\pm 34\%$  ( $2\sigma$ ) (symmetric samples)<sup>70</sup> and  $\pm 35\%$  ( $2\sigma$ ) (asymmetric samples).

The characterization in terms of the elemental composition of symmetrical mixed samples using the cyclic neutron activation analysis (CNAA) showed that the results are in good agreement with the expected values with an uncertainty of  $\pm 39\%$  ( $2\sigma$ )<sup>74</sup>. In this context the detection limits for selected chemotoxic substances were determined in symmetrical mixed samples. Depending on the PE content of the sample, detection limits ranging between 14 and 24 mg / kg for cadmium, 520 and 740 mg / kg for mercury and 5.5 and 53 g / kg for lead are achieved (measurement time approx. 30 minutes)<sup>74</sup>.

In addition, the performance of the MEDINA method for the quantification of a local concentrated element mass (cadmium plate) in homogeneous samples and asymmetric mixed

samples made out of concrete and PE was studied. For this purpose, a numerical model for localization and quantification of a local concentrated sample using the a priori information of the PGNAAs has been developed and successfully tested. The results of this quantification using the cadmium plate as local concentrated element mass are consistent with the expected values with an uncertainty of  $\pm 54\%$  ( $2\sigma$ ) for the homogeneous samples. Furthermore, the influence of additional iron (local concentrated iron sample, homogeneous iron content and iron inliners of varied thickness) in the sample matrix were investigated according to the determination of the thermal neutron flux. Additional masses of iron can be identified and their influence on the determination of the thermal neutron flux can be corrected accordingly.

# INHALTSVERZEICHNIS

<b>Kurzzusammenfassung</b> .....	<b>i</b>
<b>Abstract</b> .....	<b>iii</b>
<b>Inhaltsverzeichnis</b> .....	<b>v</b>
<b>1 Endlagerung radioaktiver Abfälle</b> .....	<b>1</b>
1.1 Ziele der Endlagerung radioaktiver Abfälle in Deutschland .....	1
1.1.1 Klassifizierung radioaktiver Abfälle .....	2
1.1.2 Abfallmengen und Abfallprognosen .....	4
1.2 Endlager Konrad .....	5
1.2.1 Leitsatz der stofflichen Deklaration .....	6
1.2.2 Bilanzierung nichtradioaktiver schädlicher Stoffe für das Endlager Konrad .....	7
1.3 Radioaktive Altlasten .....	10
1.4 Abfallprodukte – Mischabfälle .....	11
1.5 Zielsetzung der Arbeit .....	12
<b>2 Anlagen- und Probenbeschreibung</b> .....	<b>13</b>
2.1 Die MEDINA-Einrichtung .....	13
2.2 Probenbeschreibung .....	15
2.2.1 Symmetrische Proben aus Beton und PE .....	15
2.2.2 Asymmetrische Proben aus Beton und PE .....	18
2.2.3 Proben mit einem Cadmium-Blech .....	19
2.3 MCNP-Simulationen .....	21
2.3.1 Der MCNP-Computer-Code .....	21
2.3.2 MCNP-Modell der MEDINA-Einrichtung .....	23
2.3.3 Simulationen des Neutronenflusses .....	25
<b>3 Zyklische Neutronen-Aktivierungs-Analyse mit einer gepulsten Neutronenquelle</b> .....	<b>27</b>
3.1 Einführung in die Prompt- und Verzögerte-NAA .....	27
3.2 Theorie der CNA .....	30
3.3 Die-Away Time thermischer Neutronen .....	34
3.4 Gamma- und Neutronen-Selbstabsorption .....	35
3.4.1 Gamma-Selbstabsorption .....	35
3.4.2 Neutronen-Selbstabsorption .....	36
3.5 Detektor-Effizienz großvolumiger Proben .....	37
<b>4 Die-Away-Time thermischer Neutronen</b> .....	<b>39</b>
4.1 Experimentelle Bestimmung der Die-Away Time .....	39
4.2 Ergebnisse der Die-Away Time .....	42
<b>5 PGNA von großvolumigen Mischproben aus Beton und Polyethylene</b> .....	<b>49</b>
5.1 Symmetrische Matrixanordnung .....	49
5.1.1 Methode zur Quantifizierung – symmetrische Proben .....	51
5.1.2 Ergebnisse der Quantifizierung .....	53
5.2 Asymmetrische Matrixanordnung .....	55

5.2.1	PE-Segment in einer Betonmatrix (Probe B) .....	55
5.2.2	Beton-Segment in einer PE-Matrix (Probe P).....	56
5.2.3	Methode zur Quantifizierung – asymmetrische Proben .....	58
5.2.4	Ergebnisse der Quantifizierung.....	58
<b>6</b>	<b>CNAA von großvolumigen Proben .....</b>	<b>59</b>
6.1	CNAA großvolumiger Mischproben aus Beton und PE .....	59
6.2	Quantifizierung der Mischproben mittels der CNAA .....	63
6.3	Ergebnisse der Quantifizierung.....	65
<b>7</b>	<b>Nachweis eines lokal konzentrierten Elements .....</b>	<b>71</b>
7.1	Cadmiumblech in einer PE-Matrix.....	71
7.2	Algorithmus zur Lokalisierung räumlich konzentrierter Elemente .....	74
7.2.1	Beschreibung des Algorithmus.....	75
7.2.2	Validierung des Algorithmus .....	78
7.2.3	Quantifizierung der Elementmasse.....	83
7.3	Asymmetrische Proben mit einem Cd-Blech.....	85
7.3.1	Charakterisierung asymmetrischer Proben mit einem Cd-Blech .....	85
7.3.2	Ergebnisse der Quantifizierung.....	88
<b>8</b>	<b>Interferenzen in der Bestimmung des thermischen Neutronenflusses.....</b>	<b>91</b>
8.1	Lokale Eisenprobe .....	92
8.2	Homogene Verteilung von Eisen .....	94
8.3	Eisen-Inliner zwischen Matrix und Stahlfassmantel .....	103
<b>9</b>	<b>Zusammenfassung &amp; Ausblick.....</b>	<b>107</b>
	<b>Literaturverzeichnis.....</b>	<b>109</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis.....</b>	<b>114</b>
	<b>Tabellenverzeichnis .....</b>	<b>118</b>
	<b>Anhang.....</b>	<b>120</b>
	<b>Danksagung .....</b>	<b>127</b>

# 1 ENDLAGERUNG RADIOAKTIVER ABFÄLLE

## 1.1 ZIELE DER ENDLAGERUNG RADIOAKTIVER ABFÄLLE IN DEUTSCHLAND

Die Vorgaben aus der EU-Richtlinie 2011/70/Euratom werden nach dem derzeit geltenden Recht in der Bundesrepublik Deutschland erfüllt. Die rechtliche Grundlagen bieten hierbei beispielsweise das „*Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren*“ (Atomgesetz: AtG)<sup>6</sup>, die „*Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen*“ (Strahlenschutzverordnung – StrlSchV)<sup>7</sup> sowie *Allgemeine Verwaltungsvorschriften*. Nach § 9a Abs. 3 AtG hat der Bund die Pflicht, Anlagen zur Sicherstellung und zur Endlagerung radioaktiver Abfälle entsprechend zu errichten und zu betreiben. Das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) wurde hierbei für die Errichtung, den Betrieb, die Sicherstellung und die Endlagerung radioaktiver Abfälle beauftragt. Das „*Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit*“ (BMUB) besitzt die umfassende Rechts- und Fachaufsicht über das BfS. Die notwendigen Genehmigungen erteilen die zuständigen Landesbehörden.

Die Bundesrepublik Deutschland hat sich vor dem Hintergrund des Schutzes von Mensch und Umwelt, unabhängig vom radiotoxischen Gefahrenpotential, für die Endlagerung in tiefen geologischen Formationen entschieden. Als geeignete tiefengeologische Formationen versteht man dabei geeignete Wirtsgesteinsformationen, welche radioaktive Abfälle sicher vor der Biosphäre abschließen und damit eine zusätzliche Strahlenexposition für die Bevölkerung durch radioaktive Abfälle auf ein Minimum reduziert. Es gilt hier zu erwähnen, dass das größte Gefahrenpotential beim Integritätsverlust des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs liegt, welcher Wasserwegsamkeiten ermöglichen könnte.

Diese Wasserwegsamkeiten würden die Migration von radioaktiven und chemotoxischen Substanzen und Stoffen in das Grundwasser bzw. zur Biosphäre ermöglichen und eine gesundheitliche Belastung der Bevölkerung bedeuten. Vor diesem Hintergrund ist für jedes zu errichtende (tiefengeologische) Endlager für abgebrannte Brennelemente oder radioaktive Abfälle ein Sicherheitsnachweis für die sichere Betriebs- und die Nachverschlussphase zu führen. Hierfür hat das BMUB im Jahr 2010 entsprechende Sicherheitsanforderungen aufgestellt.<sup>8</sup> Der Sicherheitsnachweis muss hierbei für den Zeitraum von einer Million Jahren erbracht werden, wobei nur sehr geringe Mengen der radioaktiven und chemotoxischen Stoffmengen aus dem Endlager freigesetzt werden dürfen. Diese Anforderungen wurden in den Studien der Reaktor-Sicherheitskommission (RSK) und der Strahlenschutzkommission (SSK)

---

<sup>6</sup> Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz: AtG) in der Fassung der Bekanntmachung vom 15. Juli 1985 (BGBl. I S. 1565), das zuletzt durch Artikel 5 Absatz 6 des Gesetzes vom 24. Februar 2012 (BGBl. I S. 212) geändert worden ist.

<sup>7</sup> Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung – StrlSchV 9. Auflage, 01. November 2011

<sup>8</sup> Bundesministerium für Umwelt Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMUB): *Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle*, Techn. Ber. Berlin, 2010.

aus dem Jahr 1988<sup>9</sup> sowie der Studie zur Endlagerung radioaktiver Abfälle der IAEO aus dem Jahr 2006<sup>10</sup> beschrieben. Für ein faires und transparentes Verfahren für die Auswahl eines nationalen Endlagers für radioaktive Abfälle mit Wärmeentwicklung wurde im Jahr 2016 der Abschlussbericht der Kommission für Lagerung hoch radioaktiver Abfallstoffe vorgestellt und veröffentlicht<sup>11</sup>.

### 1.1.1 KLASSIFIZIERUNG RADIOAKTIVER ABFÄLLE

Die Klassifizierung radioaktiver Abfälle hängt von den spezifischen Entsorgungskonzepten ab. Weltweit gibt es verschiedene Maßnahmen und Lösungsansätze für die Endlagerung radioaktiver Abfälle oder abgebrannter Brennelemente. Im Wesentlichen hängt es jedoch davon ab, ob die Entsorgung oberflächennah oder in tiefen geologischen Formationen erfolgt. Vor diesem Hintergrund ergeben sich aus der Sicht der Langzeitsicherheitsanalyse und dem Langzeitsicherheitsnachweis spezifische Anforderungen an das radionuklidspezifische Aktivitätsinventar, aber auch an die potentielle Wärmeentwicklung der endzulagernden radioaktiven Abfälle.

Im Jahr 2004 hat die Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit mbH (GRS) eine internationale Bestandsaufnahme durchgeführt und einen Bericht über die Klassifizierung radioaktiver Abfälle mit ihren länderspezifischen Klassifizierungsstrukturen veröffentlicht<sup>12</sup>. Abbildung 1.1 stellt die Ergebnisse dieses Berichts zusammengefasst dar. Im internationalen Umfeld werden die radioaktiven Abfälle weitestgehend nach ihrer Dosisleistung, respektive nach ihrer spezifischen Aktivität, in verschiedene Abfallkategorien eingeteilt. Diese Abfallkategorien umfassen die *hochradioaktiven Abfälle* (engl. High Level Waste, HLW), *mittelradioaktive Abfälle* (engl. Intermediate Level Waste, ILW) und *schwachradioaktive Abfälle* (engl. Low Level Waste, LLW).

Hingegen wird in der Bundesrepublik Deutschland der radioaktive Abfall im Hinblick auf die Endlagerung in zwei Kategorien eingeteilt<sup>12</sup>: wärmeentwickelnde Abfälle und Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung. Bei Abfällen mit Wärmeentwicklung handelt es sich vordergründig um abgebrannte Brennstoffe oder um stark kontaminierte Betriebsmittel und andere kerntechnischen Komponenten (z.B. aus dem Nahfeld des Reaktordruckbehälters), während es sich bei Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung vor allen Dingen um ausgediente Betriebsmittel und Anlagenkomponenten aus dem Betrieb von Kernkraftwerken oder anderen kerntechnischen Einrichtungen handelt, welche nur eine geringfügige Kontamination aufweisen (z.B. Rückbaukomponenten aus Kraftwerksteilen). Diese

---

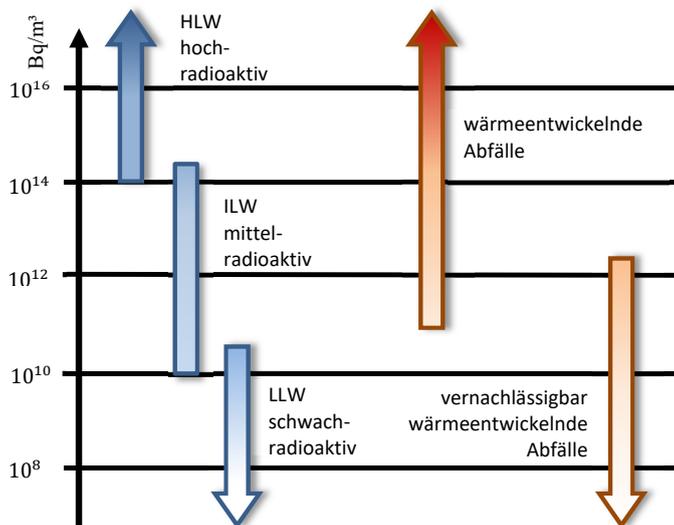
<sup>9</sup> Reaktor-Sicherheitskommission und Strahlenschutzkommission: *Zeitraum für die Beurteilung der Langzeitsicherheit eines Endlagers für radioaktive Abfälle*, Techn. Ber. Bonn, 1988.

<sup>10</sup> International Atomic Energy Agency: *Geological Disposal of Radioactive Waste*, Techn. Ber. Wien, 2006.

<sup>11</sup> Kommission Lagerung hoch radioaktiver Abfallstoffe: *Abschlussbericht*. Der Abschlussbericht ist als Kommissionsdrucksache veröffentlicht (K-Drs. 268). Bezogen über den Deutschen Bundestag 18. Wahlperiode (BT-Drs. 18/9100) vom 05. Juli 2016.

<sup>12</sup> A. Rübél, I. Müller-Lyda und R. Storck: *Die Klassifizierung radioaktiver Abfälle hinsichtlich der Endlagerung*, Techn. Ber. Köln; Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, 2004.

individuelle Klassifizierung, wie sie Deutschland hierbei durchführt, ist der Endlagerung in tiefen geologischen Formationen geschuldet, da die Wärme maßgeblich die Integrität des einschlusswirksamen Gebirgsgesteins beeinflussen kann. Eine negative Beeinflussung des Wirtsgesteins hätte möglicherweise den Integritätsverlust selbigen zur Folge und die damit verbundene Migration radioaktiver und chemotoxischer Stoffmengen in grundwasserführende Schichten oder zur Biosphäre.



**Abbildung 1.1:** Klassifizierung radioaktiver Abfälle hinsichtlich ihrer spezifischen Aktivität (blau) bzw. nach ihrer spezifischen Wärmeentwicklung (orange)<sup>12</sup>.

### 1.1.2 ABFALLMENGEN UND ABFALLPROGNOSEN

Innerhalb der Bundesrepublik Deutschland gibt es verschiedene Quellen und Abfallströme bei denen radioaktive Abfälle produziert werden. Die Abfallprognose setzt sich demnach aus folgenden Komponenten zusammen:

- Abfälle aus dem laufenden Betrieb der Kernkraftwerke / kerntechnischer Anlagen.
- Stilllegungs- und Rückbauabfälle von Kernkraftwerken / kerntechnischer Anlagen.
- Primär- und Sekundärabfälle der Kernbrennstoffversorgung und -entsorgung.
- Abfälle aus Forschungsarbeiten.
- Abfälle aus industriellen und medizinischen Einrichtungen.

Die Erfahrungen der Vergangenheit, die aus der Stilllegung und dem Rückbau von Kernkraftwerken und Forschungsreaktoren gewonnen werden konnten, zeigten, dass hierbei der Großteil der Abfallmasse entsteht. Zusätzlich konnte in Erfahrung gebracht werden, dass ca. 97 % der Abfallmasse aus der Rückbauaktivität eines Kernkraftwerks aus dem Geltungsbereich des AtG entlassen werden kann. Dies hat zur Folge, dass nur etwas 3 % der Abfallmengen als radioaktive Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung endgelagert werden müssen <sup>13</sup>.

Der Abfallbestand an konditionierten radioaktiven Abfällen in der Bundesrepublik Deutschland wurde vom BfS mit dem Stand vom 31.12.2013 zusammengetragen und auf dessen Homepage für die Bevölkerung unter dem Stichwort *Abfallbestand* publiziert <sup>14</sup>. Die Ergebnisse des Abfallbestands und der dazugehörigen Abfallprognose für das Jahr 2080 sind in Abbildung 1.2 nach Kostenträgern aufgezeigt.

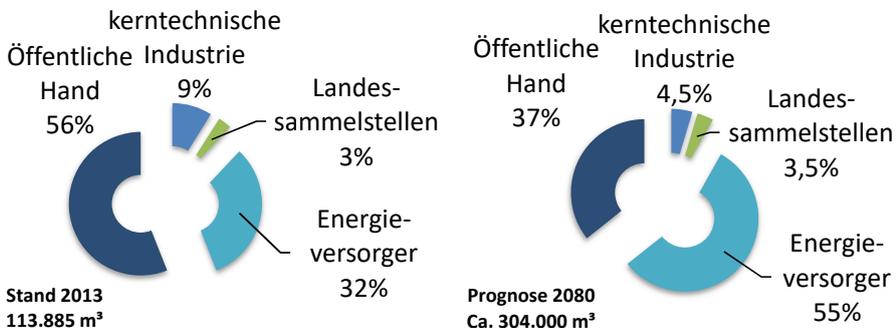


Abbildung 1.2: Abfallbestand für das Jahr 2013 sowie die Abfallprognose für das Jahr 2080 <sup>14</sup>.

<sup>13</sup> S. Thierfeld und F. Schartmann. *Stilllegung und Rückbau kerntechnischer Anlagen - Erfahrungen und Erwartungen*; Techn. Ber. Aachen: Brenk Systemplanung GmbH, 2012.

<sup>14</sup> Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): *Nukleare Entsorgung > Abfälle*,

Url: [http://www.bfs.de/DE/themen/ne/abfaelle/bestand/bestand\\_node.html](http://www.bfs.de/DE/themen/ne/abfaelle/bestand/bestand_node.html); Stichwort: Abfallbestand. Stand: 10.03.2015

Abbildung 1.2 zeigt, dass demnach ca. 113.885 m<sup>3</sup> an konditionierten Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung sowie ca. 721 m<sup>3</sup> an Abfällen mit Wärmeentwicklung vorhanden sind (Stand 31.12.2013). Rund 56 % der konditionierten Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung stammen aus der öffentlichen Hand. Es handelt sich dabei im Wesentlichen um Abfälle, welche aus dem Betrieb und dem Rückbau von Forschungsreaktoren angefallen sind. Insgesamt 3 % der bereits konditionierten Abfälle lagern in den Landessammelstellen (z.B. in Jülich, Karlsruhe u.dgl.).

Vor dem Hintergrund des Ausstiegs aus der Kernenergieproduktion im Jahr 2022 kann basierend auf den Annahmen der Kraftwerksbetreiber (Energieversorgungsunternehmen) das potentielle Abfallaufkommen bis zum Jahre 2080 prognostiziert werden<sup>15</sup>. Addiert man die prognostizierten radioaktiven Abfälle mit den bereits jetzt konditionierten Abfällen, so erwartet man im Jahr 2080 insgesamt 304.000 m<sup>3</sup> vernachlässigbar wärmeentwickelnde Abfälle. Der prognostizierte Abfallanteil durch die Kernkraftwerksbetreiber steigt von 32 % im Jahr 2013 auf ca. 55 % im Jahr 2080 an. Dieser Anstieg des Abfallanteils der Betreiber resultiert aus den bis dahin zusätzlich konditionierten Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung, die durch die Stilllegung und den Rückbau der noch verbleibenden Kernkraftwerke ab 2013, anfallen.

## 1.2 ENDLAGER KONRAD

Im Jahr 2002 wurde das Endlager Konrad behördlich genehmigt. Am 30. Mai 2007 hat das BfS als Projektverantwortlicher mit der Umrüstung der Schachanlage Konrad in Salzgitter zu einem Endlager für Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung begonnen. Bis Ende 2009 wurden im wesentlichen Planungsarbeiten für dieses Vorhaben durchgeführt. Die Auflagen und Nebenbestimmungen des Planfeststellungsbeschlusses (PFB)<sup>16</sup> wurden nach Stand von Wissenschaft und Technik in aktualisierte Ausführungsplanungen umgesetzt. Seit 2010 wird die technische Umrüstung des Schachtes Konrad zu einem Endlager ausgeführt.

Mit der geplanten Inbetriebnahme des Endlagers Konrad im Jahre 2022 wird die Entsorgung von ca. 90 % des Gesamtvolumens der radioaktiven Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung in Deutschland angestrebt. Dieses Abfallvolumen wird voraussichtlich weniger als 0,1 % der bereits angefallenen und zukünftig anfallenden Radioaktivität beinhalten. Die Einlagerungskapazität ist auf ein Abfallgebindevolumen von 303.000 m<sup>3</sup> mit einer Gesamtaktivität von 5·10<sup>18</sup> Bq begrenzt. Der Planfeststellungsbeschluss sieht eine Betriebszeit von bis zu 80 Jahren vor. Schätzungen zufolge betragen die insgesamt anfallenden Konrad-gängigen Abfallmengen zurzeit rund 290.000 m<sup>3</sup> mit einer Gesamtaktivität von etwa

---

<sup>15</sup> Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): *Nukleare Entsorgung > Abfälle*,

Url: [http://www.bfs.de/DE/themen/ne/abfaelle/bestand/bestand\\_node.html](http://www.bfs.de/DE/themen/ne/abfaelle/bestand/bestand_node.html); Stichwort: Abfallprognose. Stand: 09.02.2015

<sup>16</sup> Niedersächsisches Umweltministerium: *Planfeststellungsbeschluss für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerks Konrad in Salzgitter als Anlage zur Endlagerung fester oder verfestigter radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung*, Hannover, 22. Mai 2002.

10<sup>17</sup> Bq. Die angegebenen Volumina beinhalten sowohl die radiotoxischen als auch die chemotoxischen, wassergefährdenden Stoffe <sup>16</sup>.

Neben dem radiologischen Abfallinventar muss auch darauf geachtet werden, dass bei möglichen Freisetzungen, z. B. als Folge des Integritätsverlusts des Wirtsgesteins des tiefen geologischen Endlagers und der damit verbundenen Stoffmigration, die Grenzwerte für wassergefährdende Stoffe gemäß PFB nicht überschritten werden. Die wassergefährdenden Stoffe wurden vor allem im Wasserhaushaltsgesetz (WHG) festgelegt und durch die Grundwasserverordnung vom 18.03.1997 weiter konkretisiert. Stoffe wie Quecksilber, Cadmium und Blei weisen eine hohe Chemotoxizität auf und zählen deshalb zu diesen Stoffen. Vor diesem Hintergrund wurden diese Stoffe im PFB begrenzt. Endzulagernde Abfälle müssen deshalb auf ihre stoffliche Zusammensetzung hin untersucht werden <sup>16</sup>.

### 1.2.1 LEITSATZ DER STOFFLICHEN DEKLARATION

Die stoffliche Zusammensetzung radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung weist eine hohe stoffliche Diversität auf. Vor diesem Hintergrund musste ein Leitsatz zur praktikablen Überprüfung der Angaben der Abfallverursacher, über die stoffliche Zusammensetzung, entwickelt werden. Das BFS, welches die Abfälle und deren stoffliche Zusammensetzung auf Plausibilität und Konsistenz hin überprüfen muss, hat folgenden Leitsatz und zugehörige Vorgehensweise entwickelt <sup>17</sup>:

- Die Abfallverursacher bzw. die Konditionierer sind für die qualitative und quantitative Beschreibung der endzulagernden Abfallgebände zuständig.
- Die Komponenten des Abfalls umfassen das eigentliche Abfallmaterial, den Behälter und sofern vorhanden, Fixierungs- und/oder Abschirmmaterialien und müssen entsprechend ihrer stofflichen Zusammensetzung deklariert werden.
- Die endzulagernden Stoffe und Materialien werden zusammen mit ihrer chemischen Zusammensetzung in der einheitlichen zentralen Stoffliste/Stoffdatenbank aufgeführt. Es werden hierbei alle Bestandteile des Abfalls, inklusive des Gebindes, des Behälter und möglicher Verpackungen in die Stoffliste eingetragen. Diese Stoffliste unterliegt einer aktiven und kontinuierlichen Entwicklung und Erweiterung, um zukünftige Änderungen und Ergänzungen zeitnah berücksichtigen und einpflegen zu können.
- Art und Umfang der Informationen, die in die Stoffliste eingetragen werden, umfassen beispielsweise die jeweiligen spezifischen Massen der endzulagernden Materialien, Elemente, Verbindungen und Stoffe sowie ihren spezifischen Beschreibungsschwellenwerte <sup>16</sup>.
- Für die Anmeldung radioaktiver Abfälle zur Endlagerung im Endlager Konrad ist es ausreichend, die unterschiedlichen Stoffe gemäß ihrer Massenanteile zu beschreiben, sofern diese in der Stoffliste aufgeführt sind. Hieraus kann dann die Bestimmung der

---

<sup>17</sup> Peter Brennecke, Karin Kugel, Stefan Steyer: *Endlager Konrad – Stoffliste, Stand: Oktober 2010*, SE-IB-43/10; Bundesamt für Strahlenschutz (Hrsg.); Fachbereich: Sicherheit nuklearer Entsorgung (29. Oktober 2010)

Deklarationsschwellenwerte der bilanzierungspflichtigen Elemente und Verbindungen erfolgen<sup>16</sup>.

- Daraus leitet sich die Aussage zur Einhaltung der grundwasserrelevanten Anforderungen und die Bilanzierung im Hinblick auf die Erfüllung der Anforderungen gemäß der *Nebenbestimmung 1 und 2* ab<sup>18</sup>. Die *Nebenbestimmung 1* legt die fortlaufende Erfassung und Bilanzierung der in den Abfallgebinden enthaltenen nichtradioaktiven schädlichen Stoffen nach Art und deren Menge fest. Hierbei sind die Massen dieser einzelnen Stoffe anzugeben. Die *Nebenbestimmung 2* macht es dem BfS zur Auflage, dem *Niedersächsischen Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz* (NLWKN), welches für diesen Fall die zuständige Aufsichtsbehörde darstellt, die jährlichen Daten über die tatsächliche Einlagerung in Form eines Jahresberichts vorzulegen. Als Folge wird der Abfall vom Endlager Konrad angenommen oder entsprechend abgelehnt.

## 1.2.2 BILANZIERUNG NICHTRADIOAKTIVER SCHÄDLICHER STOFFE FÜR DAS ENDLAGER KONRAD

### Wassergefährdende Stoffe

Zu den wassergefährdenden Stoffen zählen nach der Definition des § 62 Absatz 3 Wasserhaushaltsgesetzes (WHG) feste, flüssige und gasförmige Stoffe, die dazu geeignet sind, nachteilige Veränderungen der Grundwasserbeschaffenheit herbeizuführen<sup>19</sup>. § 62 des WHG definiert zudem, dass ein Endlager, in welchem wassergefährdende Stoffe eingelagert werden, so beschaffen sein und so errichtet, unterhalten, betrieben und stillgelegt werden muss, dass der Schutz des Grundwasser jederzeit gewährleistet werden kann. Die Einschränkungen die durch die gehobene wasserrechtliche Erlaubnis für die Errichtung, den Betrieb und die Stilllegung des Endlagers Konrad einhergehen, wurden im Anhang 4 des PFB konkretisiert<sup>16</sup>.

Die stoffliche Produktkontrolle radioaktiver Abfälle<sup>20</sup> beinhaltet die Umsetzung der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis für das Endlager Konrad. Mittels der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis ist es dem BfS möglich, radioaktive Abfälle mit den darin enthaltenen nichtradioaktiven schädlichen Stoffen im Endlager Konrad und den genannten Rahmenbedingungen endzulagern. Konkret bedeutet dies, dass die in der Genehmigung aufgeführten 94 grundwasserrelevanten Elemente und Verbindungen unterschritten werden müssen um die zwei Nebenbestimmungen der höheren wasserrechtlichen Genehmigung, einzuhalten.

---

<sup>18</sup> Peter Brennecke, Karin Kugel, Stefan Steyer: *Endlager Konrad – Vorgehensweise zur Umsetzung der wasserrechtlichen Nebenbestimmung*, SE-IB-38/09-REV-1; Bundesamt für Strahlenschutz (Hrsg.); Fachbereich: Sicherheit nuklearer Entsorgung (29. Oktober 2010)

<sup>19</sup> Gesetz zur Ordnung des Wasserhaushaltes, Wasserhaushaltsgesetz – WHG, Ausfertigungsdatum 31.07.2009, geltende Fassung seit dem 1. März 2010

<sup>20</sup> Stefan Steyer: *Produktkontrolle radioaktiver Abfälle, radiologische Aspekte-Schachanlage Konrad*, Stand: Oktober 2010, Bericht des Bundesamtes für Strahlenschutz; SE-IB-30/08-REV-1, Salzgitter, Oktober 2010.

## **Bilanzierung**

Die stoffliche Zusammensetzung der endzulagernden Abfallgebinde ist vom Ablieferungspflichtigen unter Verwendung der Beschreibung, sogenannter Codes, gemäß der Stoff- und Behälterliste anzugeben. Die Beschreibung von Materialien und Stoffen geschieht über einen Stoffvektor, der die anteiligen Elemente und Verbindungen eines Materials aufschlüsselt. Es sind alle stoffspezifischen Abfallgebindebestandteile anzugeben bzw. zu deklarieren (Deklarationsschwellenwert), die den zugehörigen Beschreibungsschwellenwert überschreiten. In der Bilanzierung erfolgt eine Aufsummierung der in den Abfallgebinden eingelagerten, nichtradioaktiven schädlichen Stoffe über die Betriebszeit des Endlagers. Nichtradioaktive Stoffe, die nicht schädlich sind, werden nicht bilanziert <sup>20</sup>.

Der Beschreibungsschwellenwert eines Stoffes hängt von dessen Gefährdungspotential für die Qualität des oberflächennahen Grundwassers ab. Dies bedeutet, wenn für einen Stoff ein Deklarationsschwellenwert von < 1 % ermittelt wurde, so steht dieser Wert als Garant für die Vermeidung einer nachteiligen Veränderung des Grundwassers. Der Deklarationsschwellenwert gibt den Massenanteil eines gesundheitsschädigenden Stoffes an, bei dessen Überschreitung der betroffene Stoff bei der Endlagerung bilanziert wird. Nur bei der genannten Bilanzierung eines gesundheitsschädlichen Stoffes würde der genehmigte Wert (gemäß PFB) anteilmäßig berücksichtigt. Die Deklarationsschwellenwerte sind auf der Basis rechnerischer Nachweise abgeleitet worden <sup>17</sup>.

In Abbildung 1.3 sind Grenzwerte für ausgewählte wassergefährdende Stoffe gemäß dem PFB des Endlagers Konrad aufgezeigt <sup>16</sup>. Abbildung 1.4 verdeutlicht schematisch die Anwendung von Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwerten. Das Schema beschreibt ein fiktives Abfallgebinde und die darin enthaltenen nichtradioaktiven schädlichen Stoffe, welche zu bilanzieren sind <sup>20</sup>:

- Das Abfallgebinde setzt sich aus zwei Materialien („*Material 1*“ und „*Material 2*“) zusammen, welche in der Stoffliste aufgeführt sind.
- „*Material 1*“ und „*Material 2*“ überschreiten den jeweiligen spezifischen Beschreibungsschwellenwert. Sie müssen dem BfS angezeigt werden.
- Die Stoffe „*Substanz 1*“ und „*Substanz 2*“ („*Material 1*“) liegen unter dem jeweiligen spezifischen Deklarationsschwellenwert und müssen aus diesem Grund nicht bilanziert werden.
- Das fiktive Material „*Material 2*“ enthält zwei Substanzen („*Substanz 2*“ und „*Substanz 3*“), die durch die gehobene wasserrechtliche Erlaubnis begrenzt sind.
- „*Substanz 3*“ hingegen überschreitet den spezifischen Deklarationsschwellenwert und ist daher zu bilanzieren. Die erfasste Menge geht in die jährliche Berichterstattung des BfS an die zuständige Wasserbehörde.

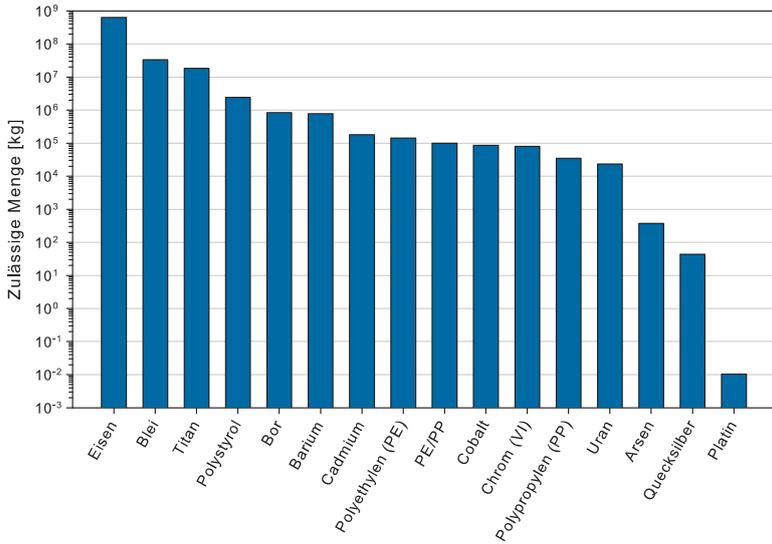


Abbildung 1.3: Grenzwerte für ausgewählte wassergefährdende Stoffe gemäß dem PFB des Endlagers Schachtanlage Konrad<sup>16</sup>.

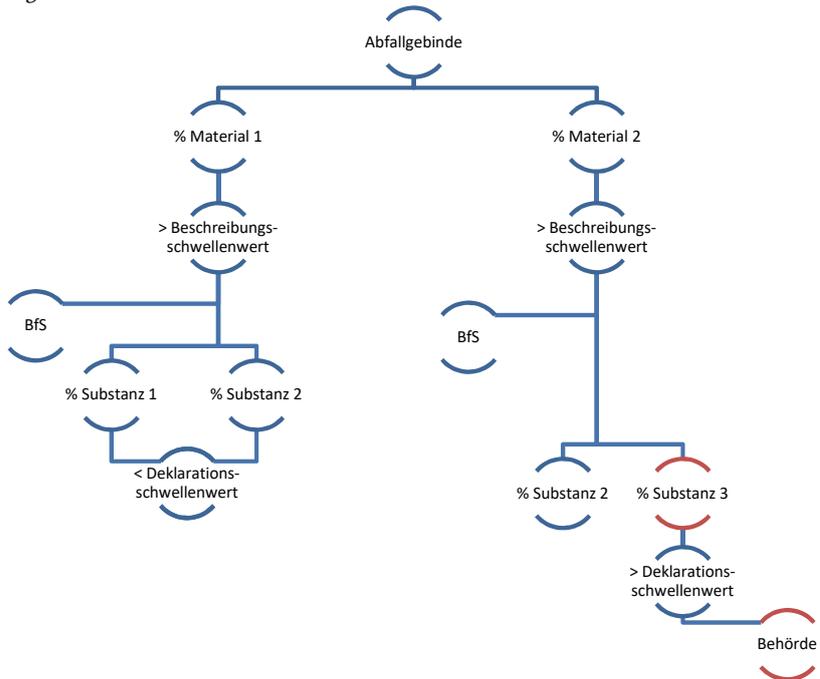


Abbildung 1.4: Schematische Darstellung der Anwendung der Deklarations- und Schwellenwertbeschreibung.

### 1.3 RADIOAKTIVE ALTLASTEN

Die Problematik zur Charakterisierung radioaktiver Altlasten (siehe Alt- und Neuabfälle <sup>1)</sup> soll am Beispiel der Abfälle aus der Schachanlage Asse II aufgezeigt werden. Am 1. Januar 2009 wurde dem BfS von der Bundesregierung die Betreiberverantwortung für die Schachanlage Asse II übertragen. Der gesetzliche Auftrag bestand darin, die Schachanlage nach Atomrecht unverzüglich stillzulegen. In der Schachanlage Asse II wurde zwischen 1967 und 1978 ca. 47.000 m<sup>3</sup>, was ca. 130.000 Fässern mit zumeist einem Volumen von 200 dm<sup>3</sup> entspricht, schwach und mittelradioaktiver Abfall eingelagert. Mit der Verabschiedung des „Gesetzes zur Beschleunigung der Rückholung radioaktiver Abfälle und der Stilllegung der Schachanlage Asse II“ (Lex Asse) <sup>21</sup>, welches im April 2013 in Kraft trat, wurde der hierfür einzuschlagende Weg durch den Bundestag vorgegeben. Erklärtes Ziel der Rückholung der Abfälle aus der Schachanlage Asse II und der damit verbundenen Stilllegung ist die möglichen nachteiligen Konsequenzen für Mensch und Umwelt zu minimieren. Dieser Zustand kann jedoch nur dann erreicht werden, wenn die Abfälle geborgen und neu konditioniert sind, so dass sie im Anschluss, den Anforderungen gemäß des Atomrechts entsprechend, endgelagert werden können.

Die im Zuge der Stilllegung an die Oberfläche zubringenden Abfälle aus der Schachanlage Asse II bedürfen einer Zwischenlagerung in einem Pufferlager und müssen anschließend einer Neukonditionierung unterzogen werden. Das Pufferlager dient hierbei dazu, Schwankungen und Unregelmäßigkeiten in den Betriebsabläufen, während der Rückholungsphase, auszugleichen und muss sich wie die Konditionierungsanlage zwingend am Standort der Schachanlage Asse II befinden. Nachdem die Abfälle neu konditioniert wurden, können diese auf einem öffentlichen Weg zu einer geeigneten Zwischen- bzw. Endlager transportiert werden. Da zum gegenwärtigen Zeitpunkt noch kein Zielendlager für die Abfälle aus der Schachanlage Asse II zur Verfügung steht, werden die derzeitigen Annahmebedingungen des Endlagers Konrad zugrunde gelegt <sup>21</sup>.

Der weitaus größte Teil der ca. 47.000 m<sup>3</sup> radioaktiven Abfälle stammt aus den Anlagen der heutigen Kernkraftwerksbetreiber. Die Gesamtaktivität in der Schachanlage Asse II betrug Anfang 2010 etwa 2.900.000 GBq. Die vorhandene Dokumentation umfasst die ungefähre Anzahl an genannten Fässern, die im Zeitraum von 1967-1978 durch die Kraftwerksbetreiber eingelagert wurden, sowie an Abfallbinden aus anderen Einrichtungen wie beispielsweise Forschungsinstituten, medizinischen und biologischen Laboratorien oder von der Bundeswehr <sup>22</sup>.

Unzureichend belegt und mit erheblichen Unsicherheiten behaftet ist jedoch, ob das Radionuklid- und Stoffinventar der eingelagerten Abfälle seinerzeit korrekt angegeben wurde.

---

<sup>21</sup> Bundesamt für Strahlenschutz (Hrsg.): *Schachanlage Asse II – Gesamtdarstellung zur Rückholungsplanung*. BfS-25/14, URN: urn:nbn:de:0221-2014021211169, Stand Januar 2014 im Februar 2014, Salzgitter.

<sup>22</sup> Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): *Asse II - Die radioaktiven Abfälle in der Asse II*.

Url: [http://www.asse.bund.de/Asse/DE/themen/was-ist/radioaktive-abfaelle/radioaktive-abfaelle\\_node.html](http://www.asse.bund.de/Asse/DE/themen/was-ist/radioaktive-abfaelle/radioaktive-abfaelle_node.html); Stichwort: „Was ist die Asse? > Radioaktiver Abfälle“. Stand: 30.09.2015

Hinweise für diese Unsicherheiten ergeben sich dabei hinsichtlich der Landessammelstelle Geesthacht. Dort mussten im Jahr 2000 Abfallgebinde neu konditioniert und neu verpackt werden, die ursprünglich für die Einlagerung in die Schachtanlage Asse II vorgesehen waren. Diese Abfallgebinde waren zu einem großen Teil korrodiert und wiesen einen Integritätsverlust auf. Bei der Neukonditionierung der genannten Abfälle wurde festgestellt, dass radioaktive Abfälle teilweise nicht ordnungsgemäß und nur unzureichend konditioniert waren. Des Weiteren wurde bei Fässern, die zur Reduktion der Dosisleistung an der Oberfläche Abschirmbehälter enthielten, die Aktivität des Inventars falsch ermittelt und zu niedrig deklariert. Somit entspricht die Deklaration dieser radioaktiven Abfälle nicht den heutigen Standards und war teilweise nicht nur unvollständig sondern auch fehlerhaft durchgeführt. Die Stichprobe an der Landessammelstelle identifizierte insgesamt 22 von 155 Fässern, welche als fehlerhaft deklariert waren. Vor diesem Hintergrund muss sich das BFS bei den Abfällen in der Schachtanlage Asse II möglicherweise ebenfalls auf fehlerhaft deklarierte radioaktive Abfälle einstellen<sup>22 23</sup>.

#### 1.4 ABFALLPRODUKTE – MISCHABFÄLLE

Die Verwendung von 200 l Fässern als Zwischenverpackung von radioaktiven Abfallprodukten ist die gebräuchlichste Form, sowohl bei Altabfällen als auch bei neu-konditionierten Abfällen. Zu diesen radioaktiven Abfallprodukten zählen beispielsweise kontaminierte Stahl- und Abschirmstrukturen aber auch andere kompaktierte Abfälle. Besonders bei den genannten Altabfällen, wie sie beispielsweise in der Asse vorhanden sind, sind Verfüllungen des radioaktiven Inventars mit Beton üblich. Die Verteilung von radioaktiven Abfällen und der Betonmatrix in diesen 200 l Fässern kann sowohl homogen als auch heterogen sein. Derartiger Mischung von verschiedenen Elementen in Abfällen werden gängiger Weise als „Mischabfälle“ bezeichnet. In Deutschland existiert jedoch keine eindeutige Definition über die tatsächliche stoffliche Zusammensetzung und Abgrenzung zu anderen Abfallformen<sup>24 25</sup>.

Diese Arbeit untersucht die Einflüsse und Auswirkungen heterogener Mischkonfigurationen auf die Charakterisierung und Quantifizierung selbiger Matrices mittels dem MEDINA-Verfahren.

---

<sup>23</sup> GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit: *Bestimmung des Inventars an chemischen und chemotoxischen Stoffen in den eingelagerten radioaktiven Abfällen der Schachtanlage Asse*. Abschlussbericht für das BMBF und BMU; Autoren: B. Buchheim (Buchheim Engineering) & H. Meyer, M. Tholen (Forschungsbergwerk Asse) März 2004

<sup>24</sup> Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit: *Verzeichnis radioaktiver Abfälle* (2013) Bestand zum 31. Dezember 2013 und Prognose; Kommission Lagerung hochradioaktiver Abfallstoffe K-MAT 13

<sup>25</sup> Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (Hrsg.): *Gemeinsames Übereinkommen über die Sicherheit der Behandlung abgebrannter Brennelemente und über die Sicherheit der Behandlung radioaktiver Abfälle* (2012) Bericht der Bundesrepublik Deutschland für die vierte Überprüfungskonferenz im Mai 2012; Referat RS III 3

## 1.5 ZIELSETZUNG DER ARBEIT

Vor dem Hintergrund der aufgezeigten Herausforderungen der Produktkontrolle radioaktiver Abfälle, studiert diese Arbeit heterogene Mischproben und charakterisiert diese auf ihre stoffliche Zusammensetzung sowie auf ihre inhomogene Verteilung. Es wurden diesbezüglich Studien zu 200 l Stahlfässern mit heterogenen Matrizen durchgeführt. Die Arbeiten erfolgten mittels der MEDINA Einrichtung <sup>4 5</sup>. Die verwendeten Proben bestehen aus einer Mischung aus Beton und Polyethylen (PE). Das PE kann aufgrund seines hohen Wasserstoffgehalts einen starken Einfluss auf die Neutronenmoderation und –absorption aufweisen und kann hierdurch als mögliche Störgröße bei dem Charakterisierungsprozess des chemotoxischen, nicht radioaktiven Inventars auftreten. Ziel dieser Arbeit ist es, mittels gepulster 14 MeV Neutronen die prompten und verzögerten  $\gamma$ -Strahlen differenziert voneinander zwischen den Neutronenpulsen aufzunehmen und hieraus die Performance des MEDINA-Verfahrens in Bezug auf stark moderierende Mischmatrizen zu studieren. Diese Arbeit soll einen positiven Beitrag zur stofflichen Charakterisierung und Produktkontrolle radioaktiver Abfälle leisten.

## 2 ANLAGEN- UND PROBENBESCHREIBUNG

### 2.1 DIE MEDINA-EINRICHTUNG

Zur Identifizierung und Quantifizierung nichtradioaktiver wassergefährdender Stoffe in 200 l Abfallprodukten wurde im Rahmen einer Kooperation zwischen der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen (RWTH Aachen) und der Forschungszentrum Jülich GmbH das Verfahren MEDINA (Multi-Element Detection based on Instrumental Neutron Activation) entwickelt. Dieses Verfahren beruht auf dem Nachweis der elementspezifischen neutroneninduzierten prompt und verzögerten  $\gamma$ -Strahlung und wurde für eine homogene Betonmatrix erfolgreich erprobt <sup>4</sup>.

Die MEDINA-Einrichtung befindet sich in den ehemaligen Räumlichkeiten des Kompaktzyklotrons des PGI (Peter Grünberg Institut) am Forschungszentrum Jülich. Sie besteht im Wesentlichen aus einer Graphitkammer, einem (D-T) Neutronengenerator der Firma EADS SODERN <sup>26</sup>, einem  $\gamma$ -Spektrometer mit einem HPGe-(High-Purity-Germanium)-Detektor (rel. Effizienz beträgt ca. 100 %) und einer Krankonstruktion. Der HPGe-Detektor ist mit einer <sup>6</sup>LiF-Abschirmung gegen thermische Neutronen geschützt. Zudem befindet sich im Inneren der Kammer ein Fassdrehteller, welcher rotationsabhängige Messungen ermöglicht, um lokal konzentrierte Elementmassen innerhalb des Fasses lokalisieren zu können<sup>5</sup>. Abbildung 2.1 zeigt die MEDINA-Einrichtung. Die Spezifikationen der einzelnen Anlagenkomponenten sind in vorherigen Arbeiten detailliert beschrieben <sup>4 5</sup>. Der Kontrollraum der MEDINA-Einrichtung mit den elektronischen Modulen zur Steuerung des Neutronengenerators und zur Aufnahme der  $\gamma$ -Spektren ist in Abbildung 2.2 gezeigt.

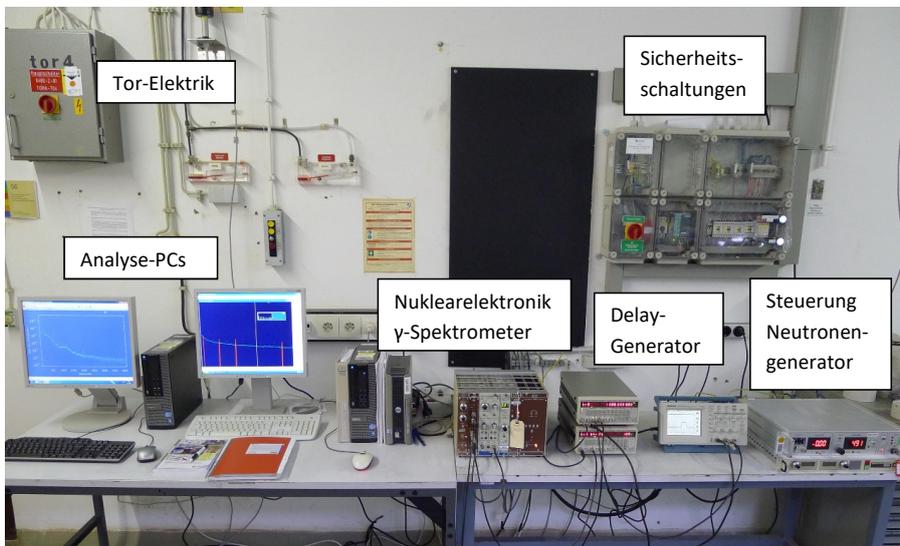
Die Signale des HPGe-Detektors werden durch den Verstärker (Canberra Model 2022) verstärkt und vom Vielkanal-Analysator (Ortec Model A<sup>spec</sup>-927), mit einer Shaping-time von 0,5  $\mu$ s, weiterverarbeitet. Der Vielkanal-Analysator und damit die Akquisition der  $\gamma$ -Spektren werden durch einen digitalen Delay-Generator (Stanford DG645) getriggert. Die  $\gamma$ -Spektren werden durch die Software Gamma-Vision-32 (Ortec) im ZDT-Modus (Zero-Dead-Time-Modus) aufgezeichnet und anschließend mittels der Software Gamma-W (Dr. Westmeier GmbH) ausgewertet.

---

<sup>26</sup> EADS SODERN: *GENIE 16GT – USER MANUAL*, November 2007 France



**Abbildung 2.1:** Die MEDINA-Einrichtung mit ihren wesentlichen Komponenten. Hierzu zählen die Graphitkammer, das  $\gamma$ -Spektrometer mit einem HPGe-Detektor, der Neutronengenerator und die Krankonstruktion (Deckel+Traverse).



**Abbildung 2.2:** Kontrollraum der MEDINA-Einrichtung mit den Modulen zum Betrieb des Neutronengenerators und zur Aufnahme von  $\gamma$ -Spektren.

## 2.2 PROBENBESCHREIBUNG

In dieser Arbeit wird die Leistung des MEDINA-Verfahrens für die Identifizierung und Quantifizierung von inhomogenen verteilten Elementen in inhomogenen Abfallmatrizen untersucht, die aus Mischungen aus Polyethylen (PE) und Beton bestehen. PE wirkt aufgrund seines hohen Wasserstoffgehalts auf Neutronen stark moderierend und absorbierend. Der Einfluss dieses Sachverhaltes sowie die der Heterogenität der Abfallmatrix werden in Bezug auf die stoffliche Charakterisierung von Mischproben untersucht. Hierzu wurden symmetrische und asymmetrische Anordnungen von Beton- und PE-Probenkörpern in 200 l Fässern, für die Untersuchung, hergestellt.

### 2.2.1 SYMMETRISCHE PROBEN AUS BETON UND PE

Die verwendeten Proben setzen sich aus zylindrischen Körpern, bestehend aus Beton und PE derselben Dimension (Höhe: 20 cm, Durchmesser: 11 cm), zusammen. Diese Körper wurden in 200 l RRW-Stahlfässern<sup>27</sup> symmetrisch zur Drehachse angeordnet. Die Gesamthöhe des 200 l RRW-Stahlfasses beträgt 900 mm, der Durchmesser 560 mm und die Wandstärke 1,5 mm. Die Gesamtmasse des Stahlfasses beträgt 52,32 kg. Die Füllhöhe durch die Probenkörper beträgt 860 mm. Die Masse der Beton- und PE-Körper beträgt 2,6 kg und 1,6 kg. Die elementare Zusammensetzung des Betons wurde in einer früheren Arbeit<sup>4 5</sup> bestimmt und wird hier für die in dieser Arbeit untersuchten Elemente herangezogen:  $1,40 \pm 0,07$  Gew.-% H,  $94,7 \pm 2,2$  ppm B,  $4,9 \pm 0,1$  Gew. % Al,  $17,4 \pm 0,2$  Gew.-% Si,  $1,38 \pm 0,06$  Gew.-% K,  $23,3 \pm 0,06$  Gew.-% Ca und  $0,26 \pm 0,01$  Gew.-% Ti. Die Wasserstoffkonzentration in PE beträgt  $13 \pm 1$  Gew.-%. Abbildung 2.3 zeigt die beiden homogenen Probenfässer HC und HP, gefüllt mit Beton- bzw. mit PE-Körpern, ohne Fassdeckel.

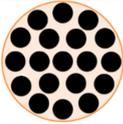
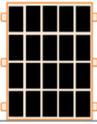
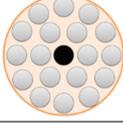
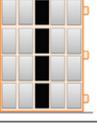
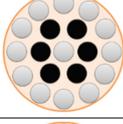
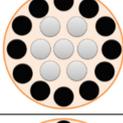
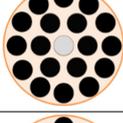
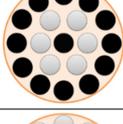
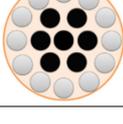


**Abbildung 2.3:** Das 200 l RRW-Stahlfäss mit 76 Betonkörpern (links) und mit 76 PE-Zylinder (rechts) befüllt.

<sup>27</sup> Eisenwerke Bassum m.b.H.: Datenblatt zum Abfallbehälter EWDBB-EB1-2-650 Rev.0 Ausführung 2.

Die radialen und axialen Anordnungen der Beton- und PE-Körper zur Erstellung von symmetrischen Proben in Bezug zur Rotationsachse des Fasses, sind in den nachfolgenden Tabellen schematisch dargestellt. Die Proben mit unterschiedlichen radialen Anordnungen der Blöcke (Proben R1 bis R6) sind in Tabelle 2.1 schematisch dargestellt. Die Proben (Proben Ax1 bis Ax4) mit unterschiedlicher axialer Anordnung, in Bezug auf die Mittellinie des Fasses, sind in Tabelle 2.2 schematisch dargestellt. Die Spezifikationen (Gewicht des Beton- und des PE-Anteils, die scheinbare Dichte und die Wasserstoffkonzentration) der Proben sind in Tabelle 2.3 zusammengefasst.

**Tabelle 2.1:** Schematische Darstellung der Proben mit unterschiedlicher radialer Anordnung von Beton- (grau) und PE-Blöcken (schwarz).

Probenbezeichnung	Horizontaler Schnitt	Vertikaler Schnitt
HP		
HC		
Ra1		
Ra2		
Ra3		
Ra4		
Ra5		
Ra6		

**Tabelle 2.2:** Schematische Darstellung der Proben mit unterschiedlicher axialer Anordnung von Beton (grau) und PE-Körpern (schwarz).

Probenbezeichnung	Vertikaler Schnitt
Ax1	
Ax2	
Ax3	
Ax4	

**Tabelle 2.3:** Spezifikation der symmetrischen Proben.

Probenbezeichnung	PE-Zylinder (#)	PE-Masse (kg)	Beton-zylinder (#)	Beton-masse (kg)	Gesamtmasse Matrix (kg)	Scheinbare Dichte (g·cm <sup>-3</sup> )	%-H
<b>Homogen</b>							
HP	76	120,84	0	0	120,84	0,61	13,0
HC	0	0	76	194,56	194,56	0,99	1,4
<b>Radial Anordnung</b>							
Ra1	4	6,36	72	184,32	190,68	0,97	1,8
Ra2	24	38,16	52	133,12	171,28	0,87	3,9
Ra3	48	76,32	28	71,68	148,00	0,75	7,4
Ra4	72	114,48	4	10,24	124,72	0,63	12,1
Ra5	52	82,68	24	61,44	144,12	0,72	8,1
Ra6	28	44,52	48	122,88	167,40	0,84	4,5
<b>Axial Anordnung</b>							
Ax1	19	30,21	57	145,92	176,13	0,89	3,4
Ax2	19	30,21	57	145,92	176,13	0,89	3,4
Ax3	38	60,42	38	97,28	157,70	0,80	5,8
Ax4	57	90,63	19	48,64	139,27	0,71	8,9

### 2.2.2 ASYMMETRISCHE PROBEN AUS BETON UND PE

Eine rotationsabhängige Messung der Probe würde im Fall einer symmetrischer Anordnungen von Beton- und PE-Körpern keine zusätzlichen Informationen bzgl. der stofflichen Zusammensetzung, gegenüber einer statischen Messung, liefern. Um die Leistung des MEDINA-Verfahrens für die Charakterisierung inhomogener Abfälle zu untersuchen, wurden asymmetrische Proben aus unterschiedlichen Anteilen von Beton und PE, gezeigt in Abbildung 2.4, hergestellt. Die Spezifikationen dieser Proben sind in Tabelle 2.4 zusammengefasst. Das Materialsegment mit dem kleineren Volumen nimmt in etwa ein Viertel des Fassvolumens (über den Querschnitt gesehen) ein. Diese Probengeometrie wurde ausgewählt, da rotationsabhängige Messungen üblicherweise in 45°-Schritten durchgeführt werden.



**Abbildung 2.4:** Asymmetrische Beladung eines 200 l RRW-Stahlfasses mit 60 Beton- und 16 PE-Körpern (links) sowie einer Beladung mit 60 PE- und 16 Beton-Körpern (rechts).

**Tabelle 2.4:** Schematische Darstellung der asymmetrischen Matrixanordnung aus Beton und PE.

Probenbezeichnung	Horizontaler Schnitt	Vertikaler Schnitt
B		
P		

Probenbezeichnung	PE-Zylinder (#)	Masse PE (kg)	Beton Zylinder (#)	Masse Beton (kg)	Gesamtmasse Matrix (kg)	Scheinbare Dichte (g·cm <sup>-3</sup> )	% H
B	16	25,44	60	153,6	179,04	0,90	3,1
P	60	95,40	16	40,96	136,36	0,68	10,2

### 2.2.3 PROBEN MIT EINEM CADMIUM-BLECH

Weiterhin wird untersucht, in wieweit sich eine Matrix mit einem hohen Moderations- und Absorptionsvermögen für thermische Neutronen auf die Identifizierung und Quantifizierung eines lokal konzentrierten wassergefährdenden Stoffes auswirkt. Durch die starke Absorption thermischer Neutronen ist es möglich, dass die Prompt- $\gamma$ -Emission eines wassergefährdenden Stoffes relativ gering ausfällt und somit die aus dem Messsignal abgeleitete Stoffmenge unterhalb der Deklarationsschwelle liegt. Diesen Sachverhalt gilt es zu studieren.

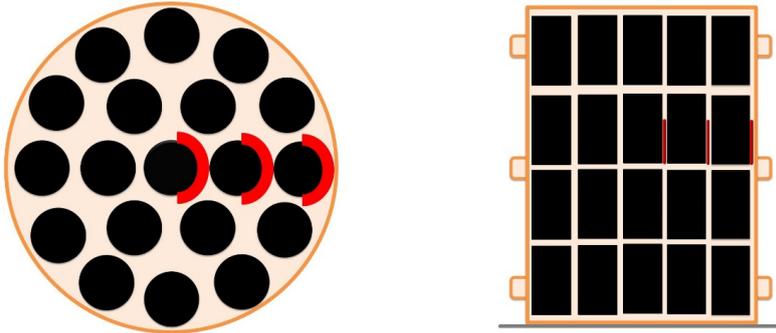
Vor diesem Hintergrund wurde ein Cadmium-Blech (Cd-Blech) sowohl in eine homogene PE Matrix (Probe HP Tabelle 2.3) als auch in asymmetrische Mischproben aus Beton und PE eingebracht. Das Cd-Blech besitzt eine Masse von 135,2 g, eine Dicke von 1 mm und eine Kantenlänge von 124,6 mm. Das Blech wurde für die genannten Studien mittels Kreppband jeweils an einem Beton- bzw. an einem PE-Körper befestigt (Abbildung 2.5).



**Abbildung 2.5:** Cd-Blech fixiert an einem PE-Körper (links) und an einem Beton-Körper (rechts).

### 200 l Fass mit einer PE-Matrix und einem Cadmium-Blech

Als Probe dient das 200 l Fass gefüllt mit PE (Probe HP Tabelle 2.3) sowie das Cadmium-Blech. Das verwendete Cd-Blech wurde nachfolgend an insgesamt drei verschiedenen radialen Positionen ( $r = 6$  cm, 17 cm und 28 cm) in der PE-Matrix verbracht. Die Probenanordnung ist schematisch in Abbildung 2.6 aufgezeigt. Die Höhe des Mittelpunkts des Cd-Blechs beträgt vom Fassboden aus 46,23 cm. Auf eine Variation der Höhe wurde hier verzichtet, da in einer früheren Arbeit anhand eines Cd-Blechs in einer homogenen Betonmatrix gezeigt werden konnte, dass sich das Messsignal (Zählrate) um maximal 20 % mit der vertikalen Position des Blechs ändert <sup>5</sup>. Diese minimale Änderung ist auf den großen Abstand zwischen Fass und Detektor zurückzuführen.



**Abbildung 2.6:** Radial- und Höhenposition des Cd-Blechs (rot) innerhalb der PE-Matrix (Probe HP Tabelle 2.3).

### Asymmetrische Proben aus Beton und PE mit einem Cadmium-Blech

Des Weiteren wurde das Cd-Blech in die asymmetrischen Proben aus Beton und PE (Kapitel 2.2.2) eingebracht, um den Nachweis lokal konzentrierter Elemente in heterogenen Abfällen zu studieren. Die Position des Blechs in den asymmetrischen Proben sind in Tabelle 2.5 aufgezeigt und entsprechen einem radialen Abstand vom Fasszentrum von 17 cm. Die Höhe des Mittelpunkts des Cd-Blechs beträgt vom Fassboden aus 46,23 cm. Das Cd-Blech wurde jeweils an einem PE- und einem Beton-Zylinder befestigt (siehe Abbildung 2.5).

**Tabelle 2.5:** Schematische Darstellung der asymmetrischen Proben aus Beton (grau) und PE (schwarz) mit dem Cd-Blech (rot).

Proben-Nr.	Horizontaler Schnitt	Axialer Schnitt
B-Cd-1		
B-Cd-2		
PE-Cd-1		
PE-Cd-2		

## 2.3 MCNP-SIMULATIONEN

### 2.3.1 DER MCNP-COMPUTER-CODE

Die Abkürzung MCNP steht für „*Monte-Carlo-N-Particle Transport Code*“. Maßgeblich verantwortlich für die Entwicklung von MCNP ist das *Los Alamos National Laboratory* (LANL), eine Kernforschungseinrichtung der US-Regierung, in New Mexico (USA). Der *MCNP-Code* steht für einen computergestützten stochastisch basierten Algorithmus zur approximativen numerischen Lösung von Problemstellungen. Zu diesen Fragestellungen zählen beispielsweise die Integration und die Lösung von Differentialgleichungen, bis hin zu der Nachbildung von komplexen physikalischen Prozessen, die nicht mehr analytisch betrachtet werden können<sup>28</sup>.

Die Grundlage von Monte Carlo Methoden liegt in der Bestimmung von Zufallszahlen, die als Entscheidungsgrundlage für das Eintreten eines Ereignisses genutzt werden. Der Schlüssel für die Monte Carlo Simulation des Teilchentransports durch Materie, ist die Korrelation der Zufallszahlen mit der Eintrittswahrscheinlichkeit für eine bestimmte Wechselwirkung, die durch den zugehörigen Wirkungsquerschnitt gegeben ist. Die Trajektorie eines Teilchens in Materie wird dazu in einzelne Schritte unterteilt, für die jeweils die Eigenschaften des Teilchens, wie beispielsweise der Impuls, die Energie sowie die Bewegungsrichtung definiert ist. Zwischen zwei Schritten können die Teilcheneigenschaften gemäß den physikalischen Wechselwirkungsoptionen verändert werden und es können gegebenenfalls neue Sekundärteilchen produziert werden. Das Primärteilchen sowie alle neu entstandenen Sekundärteilchen werden so lange verfolgt (Tracking), bis sie entweder ihre gesamte Energie verloren haben beziehungsweise mit ihrer Energie unter einen bestimmten Grenzwert fallen oder nicht mehr innerhalb des betrachteten Volumens sind. Während des Trackings können relevante Messgrößen, wie die in einem Volumen deponierte Energie oder der Fluss durch eine Oberfläche, ermittelt und gespeichert werden. Ihre Unsicherheit hängt von der Anzahl der simulierten Primärteilchen ab. Durch eine größere Anzahl an Primärteilchen  $N$ , sogenannte Historien, kann die Unsicherheit, die mit  $N^{-0,5}$  skaliert, minimiert werden. Der Computer-Code MCNP behandelt sowohl den Neutronen- als auch den Photonentransport in der Materie. Weiterhin lässt der Code eine Betrachtung von gekoppelten Transporten zu, bei dem sekundäre Photonen infolge von Neutroneninteraktionen entstehen können<sup>28 29</sup>.

In der vorliegenden Arbeit wurde das Programm MCNP in der Version 1.60 für die Simulation des Neutronentransports verwendet. MCNP betrachtet zahlreiche Historien des Neutronentransportes und addiert diese auf. In den simulierten Reaktionsketten berechnet MCNP für jede Wechselwirkung die spezifische Wahrscheinlichkeit. Hierfür nutzt es Datenbanken mit Wirkungsquerschnitten für die verschiedenen potentiellen

---

<sup>28</sup> X-5 Monte Carlo Team: *MCNP - A General N-Particle Transport Code*, Version 5; Volume I Overview and Theory, LA-UR-03-1987 (2003, updated 2005).

<sup>29</sup> Rubinstein, R. Y., (Hrsg.), David Balding.: *Simulation and the Monte Carlo Method*; Wiley Series in Probability and Statistics Bd. 707 S.374; John Wiley & Sons. (November 2008)

Wechselwirkungen <sup>30</sup>. Um eine entsprechende Simulation durchführen zu können, bedient sich der MCNP-Code international verifizierten nuklearen und atomaren Datenbanken. Zu den bedeutendsten Datenbanken gehören unter anderem die amerikanische Datenbank „Evaluated Nuclear Data File“ (ENDF) <sup>31</sup>, die japanische Datenbank „Japanese Evaluated Nuclear Data Library“ (JENDL) <sup>32</sup> und die europäische Datenbank „Joint Evaluated Fission and Fusion File“ (JEFF) <sup>33</sup>. Diese Datenbanken enthalten Informationen über die Wechselwirkungen zwischen Neutronen und der Materie. Für die Wechselwirkung von Photonen mit der Materie dient die Datenbank *XCOM* vom *National Institute of Standards and Technology* <sup>34</sup>.

Die Funktionsweise der Simulation physikalischer Größen durch MCNP soll an dieser Stelle exemplarisch für die Simulation des Neutronenstroms bzw. Neutronenflusses aufgezeigt werden. Die hierfür notwendigen Gleichungen sind dem Handbuch <sup>28</sup> entnommen. Unter Zuhilfenahme des *Surface Current Tally* (F1-Tally) kann der Neutronenstrom durch eine Oberfläche simuliert werden. Für die Anzahl  $Z$  der Teilchen zum Zeitpunkt  $t$ , in einem Volumenelement  $d\vec{r}$ , mit den zugehörigen Trajektorien der Teilchen innerhalb des Raumwinkels  $d\Omega$  für einen definierten Energiebereich  $dE$  gilt:

$$Z = n(\vec{r}, \hat{\Omega}, E, T) d\vec{r} d\Omega dE \quad 2.1$$

Unter der Annahme eines Oberflächenelements  $dA$  mit der Normalen  $\hat{n}$  zur Oberfläche, gilt für das differenzielle Volumenelement  $d\vec{r}$ , unter Berücksichtigung des Raumwinkels  $\Omega$  und der Weglänge  $v dt$  durch das Volumen:

$$d\vec{r} = v dt |\hat{\Omega} \cdot \hat{n}| dA \quad 2.2$$

Folglich

$$F1 = \int_{E_i} dE \int_{t_j} dt \int_{\Omega_k} d\Omega \int dA |\hat{\Omega} \cdot \hat{n}| v n(\vec{r}, \hat{\Omega}, E, T) \quad 2.3$$

Definiert man den skalaren Teilchenfluss

$$\Phi(\vec{r}, E, t) = \int \psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E, t) d\Omega \quad \text{mit } \psi = |\hat{\Omega} \cdot \hat{n}| v n \quad 2.4$$

---

<sup>30</sup> Shultis J. K. and Faw R. E.: *An MCNP Primer*, Dept. of Mechanical and Nuclear Engineering, Kansas State University (2006)

<sup>31</sup> M. B. Chadwick, M. Herman, P. Obložinský, et al.: ENDF/B-VII.1 nuclear data for science and technology: Cross sections, covariances, fission product yields and decay data, Nuclear Data Sheets, 112(12):2887-2996 (2011).

<sup>32</sup> K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Iwamoto, A. Ichihara, S. Kunieda, S. Chiba, K. Furutaka, N. Otuka, T. Ohsawa, T. Murata, H. Matsunobu, A. Zukeran, S. Kamada, J. Katakura, "JENDL-4.0: A new library for nuclear science and engineering", J. Nucl. Sci. Technol.48(2011)1.

<sup>33</sup> OECD/NEA Data Bank, "The JEFF-3.1.1 Nuclear Data Library", JEFF Report 22, OECD/NEA Data Bank (2009).

<sup>34</sup> Berger MJ, Hubbell JH, Seltzer SM, Chang J, Coursey JS, Sukumar R, Zucker DS, Olsen K (2010) XCOM: Photon cross section database (version 1.5). National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD

unter der Annahme des totalen skalaren Teilchenflusses  $\Phi(\vec{r}, E, t) d\vec{r} dE$  in einem Volumenelement  $d\vec{r}$ , so erhält man durch das Integral der Einzelbeiträge eines Teilchens beim durchqueren einer Fläche bzw. eines Volumens, den mittleren Teilchenfluss ( $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) einer Oberfläche (F2-Tally) bzw. den mittleren Teilchenfluss ( $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) eines Volumens (F4-Tally). Daraus ergibt sich für das F2- und das F4-Tally <sup>28</sup>:

$$F2 = A^{-1} \int_{E_i} dE \int_{t_j} dt \int dA \Phi(\vec{r}, E, t) \quad 2.5$$

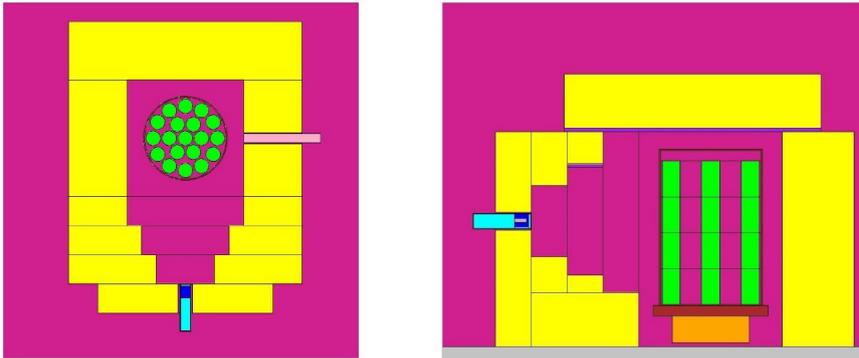
$$F4 = V^{-1} \int_{E_i} dE \int_{t_j} dt \int dV \Phi(\vec{r}, E, t) \quad 2.6$$

Das *F2-Tally* wurde im Rahmen dieser Arbeit für die numerischen Simulationen der mittleren thermischen Neutronenflüsse an der Außenhülle der verwendeten Stahlfassproben verwendet. Diese Werte wurden mit den experimentell bestimmten Werten gegenübergestellt.

Das *F4-Tally* wurde für die numerischen Simulationen der thermischen Neutronenflussverteilungen eines definierten Volumens der Proben verwendet. Für die Simulation einer Impulshöhenverteilung von Photonen in einer Simulationszelle wurde das *F8-Tally* (pulse height distribution) verwendet. Dieses Tally simuliert die Energiedeposition eines Photons in Materie und empfindet auf diese Weise einen realen, physikalischen Detektor nach <sup>28</sup>.

### 2.3.2 MCNP-MODELL DER MEDINA-EINRICHTUNG

Im Folgenden soll das MCNP-Modell der MEDINA-Einrichtung kurz präsentiert werden. In Abbildung 2.7 sind ein horizontaler und ein vertikaler Schnitt des MCNP-Modells der MEDINA-Einrichtung, beladen mit einem 200 l Stahlfass befüllt mit den einzelnen Beton-Körpern, dargestellt. Die Rollreifenelemente des Stahlfasses wurden im MCNP-Modell nicht abgebildet. Stattdessen wurde deren Elementmasse im simplifizierten Fassmantel (einfacher Zylindermantel) berücksichtigt. Die Probenkörper aus Beton und PE wurden als einzelne Körper innerhalb des 200 l Stahlfasses ausgeführt. Der horizontale Schnitt befindet sich auf der Höhe des Neutronengenerators (Höhe: 70 cm vom Boden aus). Der vertikale Schnitt geht hingegen durch den Detektor hindurch. Die stoffliche Spezifikationen der einzelnen Anlagenkomponenten <sup>4 5</sup> wurden entsprechend in das MCNP-Modell übernommen. Für die numerischen Simulationen wurde die *Evaluated Nuclear Data File* Datenbank für Wirkungsquerschnitte (ENDF/B-VII.1) verwendet <sup>31</sup>.



**Abbildung 2.7:** Horizontaler (links) und vertikaler (rechts) Schnitt durch das MCNP-Modell der MEDINA-Einrichtung.

Die Darstellungen zeigen die Luft (pink), die Graphitblöcke der Anlage (gelb), die Betonkörper im Fass (grün), den Fassdrehteller (dunkelrot), den Schrittmotor des Drehtellers (orange), den Fußboden (grau), die CFK-Platten (violett), den Detektor (hellblau) mit dem HPGe-Kristall (dunkelblau) sowie den Neutronengenerator (rosa).

Mit einer Übereinstimmung zwischen experimentellen und simulierten Daten von  $\pm 20\%$  wurde das MCNP-Modell der MEDINA-Einrichtung in einer vorherigen Arbeit bereits validiert <sup>35</sup>. Zu weiteren Validierungsarbeiten zählen beispielsweise die Optimierung der Neutronen- und  $\gamma$ -Abschirmung des HPGe-Detektors <sup>36</sup> sowie der Nachweis von <sup>235</sup>U und <sup>239</sup>Pu in radioaktiven Abfällen mittels dem Nachweis verzögerter  $\gamma$ -Linien der neutroneninduzierten Spaltprodukte <sup>37</sup>.

---

<sup>35</sup> Mauerhofer, Havenith, Carascoc, Payanc, Kettler, Mac, Perot: Quantitative comparison between PGNA measurements and MCNP calculations in view of the characterization of radioactive wastes in Germany and France, 24. Seminar Aktivierungsanalyse und Gammaskopie (SAAGAS), Februar 2013, Technischen Universität München

<sup>36</sup> T. Nicol, E. Mauerhofer, C. Carasco, B. Perot, J. Collot (2016) HPGe-detector shielding optimization with MCNP for the MEDINA neutron activation cell. J Radioanal Nucl Chem. Doi: 10.1007/s10967-016-4816-3

<sup>37</sup> T. Nicol, E. Mauerhofer, C. Carasco, B. Perot, J. Collot (2016) <sup>235</sup>U and <sup>239</sup>Pu characterization in radioactive waste drums using neutron-induced fission delayed gamma rays. IEEE (NSS/MIC) Doi: 10.1109/NSSMIC.2014.7431204

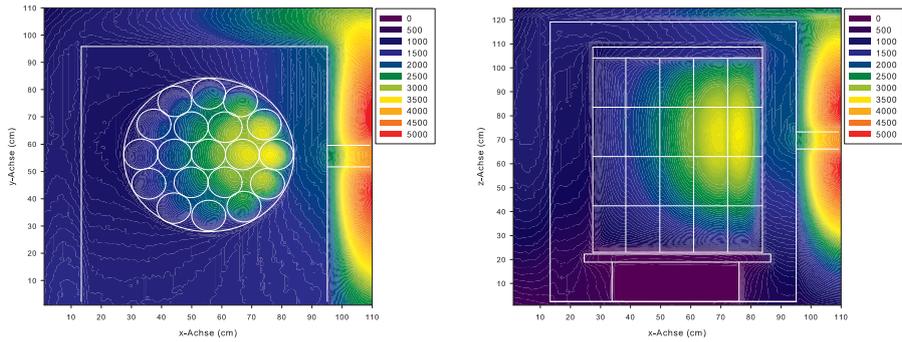
### 2.3.3 SIMULATIONEN DES NEUTRONENFLUSSES

Im Vorfeld der Experimente wurde mittels MCNP die radiale und axiale Verteilung des thermischen Neutronenflusses (Energiebereich 10-100 meV) der in Kapitel 2.2.1 beschriebenen symmetrischen Proben aus Beton- und PE-Körpern untersucht. Anhand dieser Ergebnisse kann eine Abschätzung getroffen werden, wie sich der Neutronenfluss axial und radial innerhalb der Matrix verteilt und kann zudem als Entscheidungsgrundlage für die Parametrisierung und Probenanordnung lokal konzentrierter Elementverteilungen dienen. Für die Erfassung der Neutronenflussverteilung wurde ein F4-Mesh-Tally (3D-Gitter) über den Bereich des 200 l RRW-Stahlfasses und die Anlagenstruktur gelegt. Die Voxelgröße des Gitters wurde auf  $1 \times 1 \times 1 \text{ cm}^3$  festgelegt. Bei den durchgeführten MCNP-Studien wurden  $1 \cdot 10^{10}$  Neutronen-Historien simuliert. Da MCNP aufgrund der Normierung durch die Anzahl betrachteter Historien lediglich eine Neutronenfluenz ausgibt, muss dieses Ergebnis für den Neutronenfluss mit der Quellstärke des Neutronengenerators multipliziert werden. Für die in dieser Arbeit verwendeten Einstellungen des Neutronengenerators ergibt sich ein Wert für die Quellstärke  $^4$  von  $7,2 \pm 0,9 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ .

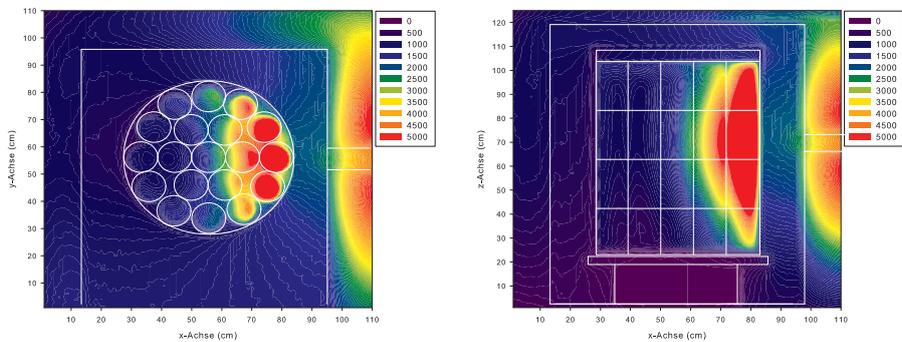
Als Beispiel sind die radialen und axialen Verteilungen des thermischen Neutronenflusses in dem Fass befüllt mit Beton-Körper in Abbildung 2.8 und im Fass befüllt mit PE-Körpern in Abbildung 2.9 gezeigt. Für eine bessere Darstellung wurde die Anlagen- sowie Fass- und Probenkörpergeometrie hinzugefügt (weiße Kontur).

Der maximale Wert des Neutronenflusses beträgt ca.  $3500 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  für die Betonmatrix und ca.  $5000 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  für die PE-Matrix. Der Gradient über den Fassquerschnitt ist für die Betonmatrix weniger stark ausgeprägt als es bei der PE-Matrix der Fall ist. Für die Betonmatrix ergibt sich ein Wert für die Abnahme des thermischen Neutronenfeldes über den Querschnitt um ca. den Faktor 3 und für die PE-Matrix um ca. einen Faktor 5.

Vergleicht man die Plots der Neutronenflussverteilung mit der mittleren freien Weglänge  $\lambda$  (cm) (Kehrwert des totalen makroskopischen Wirkungsquerschnitts) für 14 MeV-Neutronen in Materie, so lässt sich feststellen, dass die Eindringtiefe von 14 MeV Neutronen gut mit der Neutronenflussverteilung über den Fassquerschnitt übereinstimmt. Die mittlere freie Weglänge eines 14 MeV-Neutron beträgt für die verwendete Betonmatrix 38,5 cm und für die PE-Matrix 25,8 cm. An diesen Werten lässt sich erkennen, dass es zwischen Beton und Neutronen deutlich seltener zu einer Wechselwirkung (Streuung, Absorption etc.) kommt, als in PE bei gleicher Wegstrecke des Neutrons. Diese simplifizierte Berechnung der Eindringtiefe von Neutronen in Materie, in Abhängigkeit ihrer Energie, stimmt gut mit den Ergebnissen der MCNP-Simulationen über ein.



**Abbildung 2.8:** Simulierte thermischen Neutronenflussverteilung ( $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) im Energiebereich von 10-100 meV für ein Fass gefüllt mit Beton-Körpern (Probe HC).



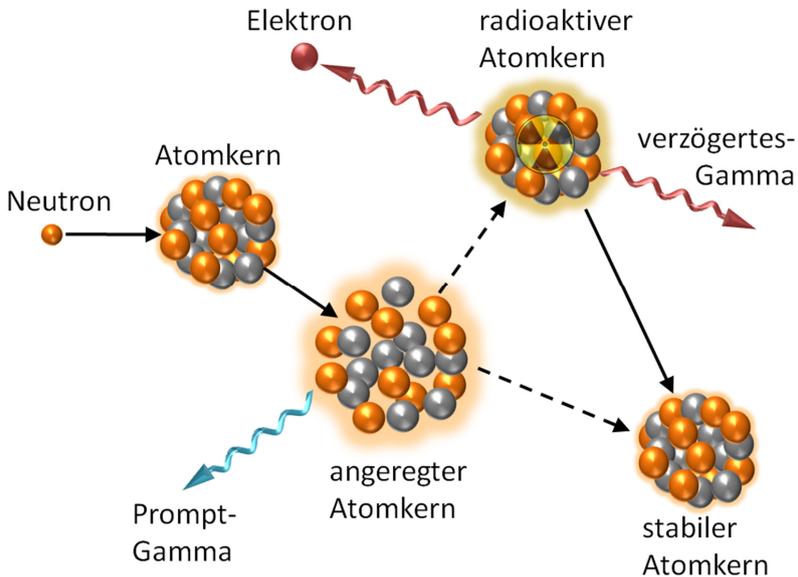
**Abbildung 2.9:** Simulierte thermischen Neutronenflussverteilung ( $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) im Energiebereich von 10-100 meV für ein Fass gefüllt mit PE-Körpern (Probe HP).

Im Anhang (A01) befinden sich die mittels MCNP simulierten horizontalen und vertikalen Neutronenflussverteilungen der symmetrischen Proben (Kapitel 2.2.1), die im Rahmen dieser Arbeit untersucht wurden. Die Ergebnisse dieser Simulationen werden in den nachfolgenden Kapiteln entsprechend für die Diskussion der experimentellen Ergebnisse herangezogen.

### 3 ZYKLISCHE NEUTRONEN-AKTIVIERUNGS-ANALYSE MIT EINER GEPULSTEN NEUTRONENQUELLE

#### 3.1 EINFÜHRUNG IN DIE PROMPT- UND VERZÖGERTE-NAA

Die Neutronen-Aktivierungs-Analyse (engl.: Neutron-Activation-Analysis, NAA) beruht auf der Wechselwirkung von Neutronen mit Atomkernen. Je nach Neutronenenergie können überwiegend folgende Reaktionen entstehen:  $(n, \gamma)$ -Reaktionen mit kalten, thermischen und epithermischen Neutronen und  $(n, p)$ -,  $(n, \alpha)$ -,  $(n, xn)$ - und  $(n, n')$ -Reaktionen mit schnellen Neutronen. All diese Reaktionen führen zu einem hochangeregten Zwischenkern, auch Compoundkern genannt, der simultan innerhalb von  $10^{-16}$  bis  $10^{-17}$  Sekunden in ein radioaktives (Aktivierungsprodukt) oder in ein stabiles Isotop (je nach Kernreaktion), durch die Emission von isotopenspezifischer prompter  $\gamma$ -Strahlung, zerfällt. Dieser Vorgang ist in Abbildung 3.1 schematisch dargestellt.



**Abbildung 3.1:** Schematische Darstellung der Prompt- und Verzögerten(delayed)-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (engl.: P&DGNA). (Eigene Darstellung)

Das radioanalytische Verfahren, das auf dem Nachweis der prompten  $\gamma$ -Strahlung beruht, wird als Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (PGNAA) bezeichnet. Die PGNAA erfolgt an kalten bzw. thermischen Neutronenstrahlen von Forschungsreaktoren zur zerstörungsfreien Multi-Element-Analyse von verschiedenen kleinen Proben<sup>38</sup>. An diesen Neutronenstrahlen ist es unter anderem zudem möglich, den partiellen Wirkungsquerschnitt von Actiniden ( $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$  und  $^{242}\text{Pu}$ ), mittels der PGNAA mit kalten Neutronen, zu bestimmen<sup>39</sup>. Die Messung der aus dem Zerfall der gebildeten Aktivierungsprodukte emittierten verzögerten  $\gamma$ -Strahlung entspricht der Verzögerten-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (engl.: Delayed Neutron Activation Analysis, kurz: DGNAA).

Im Jahr 1993 berichteten *P. Bode* und *R.M.W. Overwater* über die Möglichkeit, die Elementzusammensetzung von großvolumigen Proben durch die Verwendung der Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) an Forschungsreaktoren zu bestimmen<sup>40</sup>. In den folgenden Jahren wurden im Rahmen der instrumentellen NAA für großvolumige Proben weitere Erkenntnisse gewonnen. Es wurden verschiedene Verfahren für die Charakterisierung von homogenen und heterogenen Proben in der Größenordnung von mehreren Kilogramm<sup>41</sup><sup>42</sup><sup>43</sup><sup>44</sup> und mehreren Litern an Volumen (z. B. für die Charakterisierung von archäologischen Gegenständen), entwickelt und validiert<sup>45</sup><sup>46</sup>. Für die Analyse von sehr großen und dicken Proben werden aufgrund ihrer höheren Eindringtiefe im Vergleich zu kalten und thermischen Neutronen, hochenergetische Neutronen wie beispielsweise aus Isotopenquellen (z. B.  $^{252}\text{Cf}$ ,  $^{241}\text{Am}$ -Be) oder DD / DT Neutronengeneratoren benötigt. Vor diesem Hintergrund wurden NAA-Systeme mit schnellen Neutronen für verschiedene Anwendungen entwickelt (z. B. Sprengstoffidentifikation<sup>47</sup>, industrielle Online-Bulk-Analyse<sup>48</sup>, Charakterisierung von Abfällen<sup>49</sup>). Eine nennenswerte Erweiterung der PGNAA erfolgt durch die Messung prompter

---

<sup>38</sup> Molnár GL (2004) Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis with Neutron Beams. Kluwer Academic Publishers ISBN 978-1-40201-304-1

<sup>39</sup> C. Genreith: Partial Neutron Capture Cross Sections of Actinides using Cold Neutron Prompt Gamma Activation Analysis; Forschungszentrum Jülich GmbH; Dissertation 2015; ISBN: 978-3-95806-036-4

<sup>40</sup> Bode P, Overwater RMW (1993) Trace-element determinations in very large samples J Radioanal Nucl Chem 167: 169-176

<sup>41</sup> Overwater RMW, Bode P, de Goeij JJM, Hoogenboom JE (1996) Feasibility of elemental analysis of kilogram-size samples by instrumental neutron activation analysis. Anal. Chem. 68:341-348

<sup>42</sup> Bode P, Overwater RMW, de Goeij JJM (1997) Large-sample neutron activation analysis. J Radioanal Nucl Chem 216: 5-11

<sup>43</sup> Blaauw M, Lakmaker O, van Aller P (1997) The accuracy of instrumental neutron activation analysis of kilogram-size inhomogeneous samples. Anal. Chem. 69:2247-2250

<sup>44</sup> Bode P, Overwater R.M.W., de Goeij JJM (1997) Large-sample neutron activation analysis. J Radioanal Nucl Chem 216: 5-11

<sup>45</sup> Stamatelatos IE, Tzyka F, Vasilopoulou T, Koster-Ammerlaam MJJ (2010) Large sample neutron activation analysis of a ceramic vase. J Radioanal Nucl Chem 283:735-740

<sup>46</sup> Vasilopoulou T, Stamatelatos IE, Montoy EH, Bedregal PS, Tsalafoutas I, Bode P (2015) Large sample neutron activation analysis of irregular-shaped pottery artifact. J Radioanal Nucl Chem 303:853-858

<sup>47</sup> Whetstone ZD, Kearfott KJ (2014) A review of conventional explosives detection using active neutron interrogation. J Radioanal Nucl Chem 301:629-639

<sup>48</sup> Lim CA (2004) Recent development in neutron-induced gamma activation for on-line multielemental analysis in industry. J Radioanal Nucl Chem 262:525-532

<sup>49</sup> Dulloo AR, Ruddy FH, Congedo TV, Gehrke RJ (1998) Detection limits of a laboratory pulsed gamma neutron activation analysis system for the nondestructive assay of mercury, cadmium and lead. Nucl Tech 123:103-112

$\gamma$ -Strahlung aus inelastischen Kernreaktionen, (n, n' $\gamma$ )-Reaktionen an Spaltneutronen der Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz (FRM II an der TU München)<sup>50 51 52</sup>.

In dieser Arbeit werden die PGNA und die DNAA unter Verwendung einer (14 MeV) gepulsten Neutronenquelle kombiniert und hier als Zyklische-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (engl.: Cyclic Neutron Activation Analysis<sup>53</sup>, kurz: CNAA) bezeichnet. Die prompten und verzögerten  $\gamma$ -Linien werden zyklisch getrennt voneinander, zwischen den Neutronenpulsen, aufgezeichnet. Die Informationsgewinnung über die Abfallzusammensetzung aus prompten  $\gamma$ -Linien durch die Aktivierung mit thermischen/epithermischen Neutronen wurde bereits in einer vorherigen Arbeit gezeigt<sup>4 5</sup>. Zusätzliche Informationen über die Zusammensetzung einer Matrix können durch die Messung verzögerten  $\gamma$ -Linien von kurzlebigen Radionukliden aus der Aktivierung mit schnellen und thermischen Neutronen, wie beispielsweise <sup>16</sup>N, <sup>24m</sup>Na, <sup>207m</sup>Pb, <sup>27</sup>Mg, <sup>28</sup>Al, und <sup>52</sup>V gewonnen werden. Jedoch benötigt die Messung der verzögerten  $\gamma$ -Strahlung eine Optimierung der Bestrahlungs- und Messbedingungen bzw. Kenntnisse über das Abklingen des thermischen Neutronenflusses.

Relevante Kernreaktionen mit thermischen und schnellen Neutronen, die für den Nachweis mittels der CNAA geeignet sind, sind im Anhang (A02) tabellarisch zusammengefasst.

---

<sup>50</sup> M. Rossbach, E. Mauerhofer (2015) FaNGaS: Fast Neutron Gamma Spectroscopy instrument for prompt gamma signature of inelastic scattering reactions. *Journal of large-scale research facilities*, 1, A32; Doi: <http://dx.doi.org/10.17815/jlsrf-1-54>

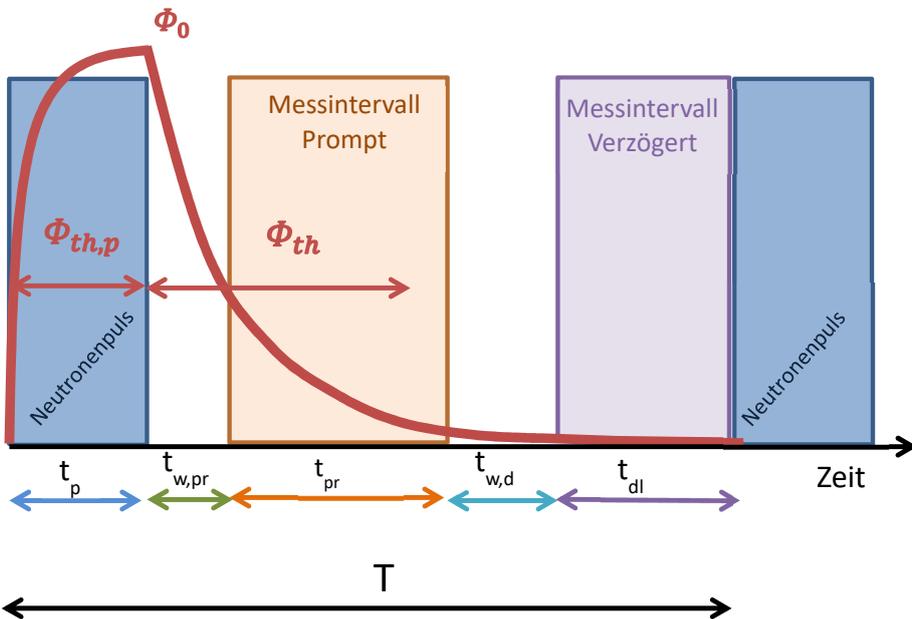
<sup>51</sup> Randiamalala TH, Rossbach M, Mauerhofer E, Révay Zs, Söllradl S, Wagner FM (2016) FaNGaS: A new instrument for (n, n' $\gamma$ ) reaction measurements at FRM II. *Nucl Instrum Methods Phys Res A* 806:370-377

<sup>52</sup> Rossbach M, Randiamalala T, Mauerhofer E, Révay Zs, Söllradl S (2016) Prompt and delayed inelastic scattering reactions from fission neutron irradiation - first results of FaNGaS. *J Radioanal Nucl Chem* 309:149-154

<sup>53</sup> W. W. Givens, W. R. Mills, R. L. Caldwell (1970): *Cyclic Activation Analysis. Nuclear Instruments and Methods*, Doi 10.1016/0029-554X(70)90302-2

### 3.2 THEORIE DER CNA

Eine Sequenz der CNA mit einer gepulsten Neutronenquelle ist in Abbildung 3.2 schematisch dargestellt. Die Akquisition der prompten und verzögerten  $\gamma$ -Spektren findet zwischen den Neutronenimpulsen statt. Die Länge der Neutronenpulse ist  $t_p$  (ms) und entspricht der Bestrahlungsdauer der Probe mit schnellen (14 MeV) Neutronen. Der Nachweis der prompten  $\gamma$ -Strahlung erfolgt über die Zeit  $t_{pr}$  (ms) während der Abnahme des thermischen Neutronenflusses unmittelbar nach Ende der Neutronenimpulse. Die Akquisition der verzögerten  $\gamma$ -Strahlung erfolgt hingegen über die Zeit  $t_{dl}$  (ms) nach einer bestimmten Wartezeit  $t_{w,d}$  (ms), nachdem der thermische Neutronenfluss signifikant abgeklungen ist. Die Repetitionsdauer  $T$  (s) der gesamten Messsequenz setzt sich demnach wie folgt zusammen:  
 $T = t_p + t_{w,pr} + t_{pr} + t_{w,d} + t_{dl}$ .



**Abbildung 3.2:** Schematische Darstellung der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse (CNA) mit einer gepulsten Neutronenquelle. (Die Parameter sind im Text über der Abbildung gegeben.)

Der Aufbau des thermischen Neutronenflusses  $\Phi_{th,p}$  ( $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) innerhalb des schnellen Neutronenpulses wird durch folgende Gleichung ausgedrückt (für  $t = 0$  als das Ende des Neutronenpulses)<sup>54</sup>:

$$\Phi_{th,p}(t) = \Phi_0 \frac{\left(1 - e^{-\frac{t+t_p}{\Lambda}}\right)}{\left(1 - e^{-\left(\frac{t_p}{\Lambda}\right)}\right)} \text{ mit } -t_p \leq t \leq 0 \quad 3.1$$

Hierbei ist  $\Phi_0$  ( $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) der thermische Neutronenfluss am Ende des Neutronenpulses und  $\Lambda$  (ms) die Die-Away Time thermischer Neutronen. Das Abklingen des Neutronenflusses nach dem Neutronenpuls wird wie folgt beschrieben:

$$\Phi(t) = \Phi_0 e^{-\frac{t}{\Lambda}} \text{ für } t \geq 0 \quad 3.2$$

Die Integration von Gleichung 3.2 über die Messdauer der prompten  $\gamma$ -Strahlung  $t_{pr}$  führt zu dem mittleren thermischen Neutronenfluss:

$$\bar{\Phi}_{th,pr} = \frac{\Phi_0 \cdot \Lambda}{t_{pr}} \cdot \left(1 - e^{-t_{pr}/\Lambda}\right) \quad 3.3$$

Die Zählrate  $Z_{E\gamma}$  ( $\text{s}^{-1}$ ) einer prompten  $\gamma$ -Linie, die während des Zeitraumes  $t = n \cdot t_{pr}$  (s) gemessen wird, wobei  $n$  die Anzahl der Neutronenimpulse darstellt, kann mittels folgender Beziehung (für den Fall  $T \ll \Lambda$ ) beschrieben werden:

$$Z_{E\gamma} = \frac{m}{M} \cdot N_A \cdot \sigma_{E\gamma} \cdot \varepsilon_{E\gamma} \cdot \Phi_{th,pr} \left[1 + \left(0,44 + \frac{I(E\gamma)}{\sigma}\right) \cdot R\right] \quad 3.4$$

Hierbei ist  $m$  (g) die Masse des Elements,  $M$  ( $\text{g mol}^{-1}$ ) die Molmasse des Elements,  $N_A$  die Avogadro-Zahl,  $\sigma_{E\gamma}$  ( $\text{cm}^2$ ) der partielle Wirkungsquerschnitt für die  $\gamma$ -Emission<sup>31</sup>,  $\varepsilon_{E\gamma}$  die Photopeak-Effizienz der betrachteten  $\gamma$ -Linie, und  $R$  das Verhältnis zwischen dem thermischen und epithermischen Neutronenfluss. Die Bestimmung des Verhältnisses zwischen dem thermischen und dem epithermischen Neutronenfluss  $R$  ( $R = 0,182 \pm 0,024$ ) in der Bestrahlungskammer wurde in einer früheren Arbeit experimentell durchgeführt<sup>5</sup>.

Die Berücksichtigung epithermischer Neutronen ist nur für eine kurze Repetitionszeit der Neutronenpulse erforderlich (für den Fall  $T \ll \Lambda$ ), andernfalls kann aufgrund des relativ langen Abklingens der thermischen Neutronen, im Vergleich zur Moderationszeit der schnellen Neutronen (ca.  $300 \mu\text{s}$ )<sup>5</sup>, der Beitrag der epithermischen Neutronen zur Zählrate  $Z_{E\gamma}$

<sup>54</sup> Jordan KA, Gozani T, Vuljic J (2008) Differential die-away analysis system response modeling and detector design. Nucl Instrum Methods Phys Res. Doi: 10.1016/j.nima.2008.02.039

vernachlässigt werden. Hieraus würde sich dann (für den Fall  $T \gg \Lambda$ ) für die Zählrate  $Z_{E\gamma}$  ( $s^{-1}$ ) einer prompten  $\gamma$ -Linie folgende Beziehung ergeben:

$$Z_{E\gamma} = \frac{m}{M} \cdot N_A \cdot \sigma_{E\gamma} \cdot \varepsilon_{E\gamma} \cdot \Phi_{th,pr} \quad 3.5$$

Im Fall von Prompt- $\gamma$ -Interferenzen aus der Aktivierung der Anlagekomponenten wird die gemessene Zählrate  $Z_{E\gamma}$ , unter Berücksichtigung des unterschiedlichen Abklingverhaltens der thermischen Neutronen während der Proben- und Untergrundmessung (Leeres 2001 Fass), wie folgt korrigiert:

$$Z'_{E\gamma} = Z_{E\gamma} - \frac{\Lambda_{E\gamma}}{\Lambda_{E\gamma,0}} \cdot Z_{E\gamma,0} \quad 3.6$$

Hierbei ist  $Z'_{E\gamma}$  die korrigierte Zählrate ( $s^{-1}$ ),  $Z_{E\gamma,0}$  ( $s^{-1}$ ) die Zählrate der betrachteten prompt  $\gamma$ -Linie in der Untergrundmessung,  $\Lambda_{E\gamma}$  (ms) und  $\Lambda_{E\gamma,0}$  (ms), die Die-Away Times thermischer Neutronen für die Messung mit und ohne Probenmatrix.

Die kumulierten Zählimpulse  $P_{E\gamma}$  der verzögerten  $\gamma$ -Linie eines radioaktiven Isotops, das durch Wechselwirkung mit schnellen Neutronen induziert wird, kann gemäß dem Schema aus Abbildung 3.2, wie folgt beschrieben werden<sup>55</sup>:

$$P_{E\gamma} = \frac{m}{M} \cdot N_A \cdot h \cdot \sigma_f \cdot \Phi_f \cdot \varepsilon_{E\gamma} \cdot I_{E\gamma} \cdot (1 - e^{-\lambda t_p}) (e^{-t_w,pr}) (e^{-t_{pr}}) (1 - e^{-\lambda t_d}) g(\lambda, T, n) \quad 3.7$$

mit

$$g(\lambda, T, n) = \frac{1}{\lambda} \left[ \frac{n}{(1 - e^{-\lambda T})} - \frac{e^{-\lambda T} (1 - e^{-n \cdot \lambda \cdot T})}{(1 - e^{-\lambda T})^2} \right] \quad 3.8$$

Hierbei ist  $h$  die Isotopenhäufigkeit,  $\sigma_f$  ( $cm^2$ ) der Absorptionswirkungsquerschnitt für schnelle Neutronen<sup>31</sup>,  $\lambda$  ( $s^{-1}$ ) die Zerfallskonstante des gebildeten Aktivierungsprodukts,  $I_{E\gamma}$  die Intensität der verzögerten  $\gamma$ -Linien. Der schnelle Neutronenfluss  $\Phi_f$  ( $cm^{-2} s^{-1}$ ), gemittelt über das Probenvolumen während des Neutronenpulses wird wie folgt berechnet<sup>3</sup>:

$$\Phi_f = \Phi_{f,Fass} \cdot e^{-\Sigma_{abs} \cdot d} \quad 3.9$$

Hierbei ist  $\Phi_{f,Fass}$  ( $cm^{-2} s^{-1}$ ) der schnelle Neutronenfluss an der Oberfläche des Stahlfasses,  $\Sigma_{abs}$  ( $cm^{-1}$ ) der totale makroskopische Wirkungsquerschnitt für 14 MeV Neutronen und  $d$  (cm) der

<sup>55</sup> Givens WW, Mills WR, Caldwell RL (1970) Cyclic activation analysis. Nucl Instrum Methods 80:95-103

Durchmesser des Stahlfasses. Der Wert für  $\Phi_{f, Fass}$  ist über die 1811 keV  $\gamma$ -Linie von  $^{56}\text{Mn}$ , induziert durch die (n,p)-Reaktion mit schnellen Neutronen mit dem Stahlfass.

Die kumulierten Zählimpulse  $P_{E\gamma}$  der verzögerten  $\gamma$ -Linien eines radioaktiven Isotops, welche durch Wechselwirkung mit thermischen/epithermischen Neutronen bereits während der Thermalisierung der Neutronen innerhalb des Pulses induziert werden, können durch folgende Gleichung beschrieben werden:

$$P_{E\gamma} = \frac{m}{M} N_A \cdot h \cdot \sigma_{th} \cdot \varepsilon_{E\gamma} \cdot I_{E\gamma} \cdot (1 - e^{-\lambda t_{dl}}) \cdot (e^{-\lambda t_{pr}}) \cdot [\Phi_{th,pr}(1 - e^{-\lambda t_{pr}}) + \Phi_{th,p} \cdot [1 + (0.44 + I/\sigma_{th})R] \cdot (1 - e^{-\lambda t_p})] \cdot g(\lambda, T, n) \quad 3.10$$

Hierbei sind ergänzend folgende Parameter zu nennen:  $\Phi_{th,p}$  ( $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) ist der thermische Neutronenfluss während der schnellen Neutronenpulse,  $\sigma_{th}$  ( $\text{cm}^2$ ) der isotopische Wirkungsquerschnitt für die Neutronenabsorption,  $I$  ( $\text{cm}^2$ ) das isotopische Resonanzintegral<sup>31</sup> und  $R$  das experimentell bestimmte Verhältnis zwischen thermischen und epithermischen Neutronen.

Der mittlere thermische Neutronenfluss  $\Phi_{th,p}$  ( $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) während der schnellen Neutronenpulse steht mit dem mittleren thermische Neutronenfluss  $\Phi_{th,pr}$  ( $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ), der nach den Neutronenpulsen bestimmt wird, in Verbindung und kann wie folgt beschrieben werden:

$$\Phi_{th,p} = \frac{\Phi_{th,pr}}{(1 - e^{-t_{pr}/\bar{\Lambda}})} \left[ \frac{t_{pr}}{\bar{\Lambda}(1 - e^{-t_p/\bar{\Lambda}})} - \frac{t_{pr}}{t_p} \right] \quad 3.11$$

Hierbei ist  $\bar{\Lambda}$  (s) die Die-Away Time thermischer Neutronen im Stahlfass. Der mittlere thermische Neutronenfluss im Stahlfass und der Probenmatrix wird unter Verwendung der prompten  $\gamma$ -Linien von  $^{56}\text{Fe}$  des standardisierten Stahlfasses, welches als Neutronenflussmonitor dient, bestimmt <sup>56 57</sup>.

<sup>56</sup> Mauerhofer E, Kettler J International Patent Application WO 2012/010162 A1, Australian Patent AU201128018, Chinese Patent ZL201180035866.0, Japanese Patent 2013-519961

<sup>57</sup> Mauerhofer E, Havenith A, Kettler J (2015) Prompt gamma neutron activation analysis of a 200 L steel drum filled with concrete. J Radioanal Nucl Chem. Doi: 10.1007/s10967-016-4768-7

### 3.3 DIE-AWAY TIME THERMISCHER NEUTRONEN

Die zuvor erwähnten Kenntnisse über die Die-Away Time sind Voraussetzung für den sensitiven Nachweis von verzögerter  $\gamma$ -Strahlung, ohne Interferenz durch prompte  $\gamma$ -Strahlung. Die Die-Away Time beschreibt die Abnahme thermischer Neutronen durch die fortschreitende Thermalisierung schneller Neutronen durch Streuprozesse, die schließlich zu einer Absorption des Neutrons durch die Materie führt. Die Die-Away Time kann unter Verwendung der Ein-Gruppen-Diffusionstheorie in einem simplifizierten Modell angenähert werden. Hierzu wird die Ortsabhängigkeit des Neutronenflusses durch das „Buckling“ und die Energieabhängigkeit durch das Konzept der effektiven Neutronentemperatur simplifiziert substituiert. Die Die-Away Time  $\Lambda$  (s) kann anschließend durch folgende Formel beschrieben werden<sup>58 59</sup>:

$$\Lambda^{-1} = \Sigma_{abs} \cdot v \frac{v}{3[(1 - \mu)\Sigma_s + \Sigma_{abs}]} B^2 - CB^4 \quad 3.12$$

Hierbei sind  $\Sigma_{abs}$  ( $\text{cm}^{-1}$ ) der makroskopischen Absorptionswirkungsquerschnitt,  $\Sigma_s$  ( $\text{cm}^{-1}$ ) der makroskopische Streuwirkungsquerschnitt,  $B^2$  ( $\text{cm}^{-2}$ ) das geometrischen Buckling,  $C$  ( $\text{cm}^4 \text{s}^{-1}$ ) der Diffusionskoeffizient sowie  $\mu$  der mittleren Streuwinkel und  $v$  ( $\text{cm s}^{-1}$ ) die Geschwindigkeit des thermischen Neutrons. Die Die-Away Time ist ein fundamentaler Parameter in der Anwendung von Aktivierungsmethoden mit gepulsten Neutronenquellen. Beispielsweise findet Sie Anwendung bei der differentiellen Die-Away Time Analyse für die Detektion von spaltbaren Stoffen in radioaktiven Abfälle<sup>37</sup> oder Cargo-Containern<sup>60</sup>. In der Regel wird die Die-Away Time durch die direkte Messung des Abklingens thermischer Neutronen mit  $^3\text{He}$ -Detektoren bestimmt<sup>61</sup>. Des Weiteren kann die Die-Away Time auch aus dem Abklingen des Signals der prompten  $\gamma$ -Emission abgeleitet werden<sup>62</sup>. Die letzte Methode wird in dieser Arbeit verwendet.

Aus den Gleichungen 3.3 bis 3.7, wobei in Gleichung 3.7 die Halbwertszeit des radioaktiven Isotops durch die Die-Away Time ersetzt wird, wird die Zeitabhängigkeit der Zählrate einer prompten  $\gamma$ -Linie durch folgende Beziehung beschrieben:

$$Z_{E\gamma}(t) = N \sigma_{E\gamma} \varepsilon_{E\gamma} \frac{\Phi_0 \cdot \Lambda}{t_{pr}} \cdot e^{-\frac{tW_{pr}}{\Lambda}} \cdot \left(1 - e^{-\frac{t_{pr}}{\Lambda}}\right) \cdot \left[ \frac{n}{\left(1 - e^{-\frac{T}{\Lambda}}\right)} - \frac{e^{-\frac{T}{\Lambda}} \left(1 - e^{-\frac{n \cdot T}{\Lambda}}\right)}{\left(1 - e^{-\frac{T}{\Lambda}}\right)^2} \right] \cdot e^{-\frac{t}{\Lambda}} \quad 3.13$$

<sup>58</sup> Beckurts K., Wirtz K. (1964) Neutron Physics, Berlin, Doi: 10.1007/978-3-642-87611-1

<sup>59</sup> Albert Ziegler, Hans-Josef Allelein (Hrsg.): Reaktortechnik – Physikalisch-technische Grundlagen. 2. Auflage 2013, ISBN: 978-3-642-33845-8, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 1983,2013.

<sup>60</sup> Jordan KA, Vuljic J, Gozani T (2007) Remote thermal neutron die-away measurements to improve differential die-away analysis. Nucl Instrum Methods Phys Res. Doi: 10.1016/j.nima.2007.04.089

<sup>61</sup> M.F. L'Annunziata: Handbook of Radioactivity Analysis. Third Edition 2012. Elsevier Inc. ISBN: 978-0-12-384873-4

<sup>62</sup> Yee Ryan M, Timothy Shaw J, Gozani Tsahi (2009) Thermal neutron die-away studies in a 14 MeV neutron-based active interrogation system. IEEE Trans Nucl Sci. Doi: 10.1109/TNS.2009.2017373

Hierbei ist  $t_{pr}$  die Messzeit des prompten  $\gamma$ -Spektrums nach einer Wartezeit  $t_{W,pr}$  nach Ende des Neutronenpulses.

### 3.4 GAMMA- UND NEUTRONEN-SELBSTABSORPTION

Bei großvolumigen Proben, wie beispielsweise radioaktive Abfallfässer, unterliegen Photonen und Neutronen der Selbstabsorption, die von der Probengeometrie, der Elementzusammensetzung der Probe und von der Teilchenenergie abhängig ist <sup>63</sup>. Fundamentale Größen für die Abschwächung von Photonen bzw. Neutronen sind die Massenschwächungskoeffizienten <sup>34</sup> bzw. mikroskopischen Wirkungsquerschnitte <sup>31</sup>. Die Berücksichtigung der Selbstabsorptionskorrektur ist für die Wahrung der Proportionalität zwischen der gemessenen Zählrate der  $\gamma$ -Linien und der Stoffmenge notwendig.

#### 3.4.1 GAMMA-SELBSTABSORPTION

In dieser Arbeit wird die  $\gamma$ -Selbstabsorption für eine Platte ( $\kappa_{Platte}$ ) und für einen Zylinder ( $\kappa_{Zylinder}$ ) durch folgende Gleichungen bestimmt <sup>64</sup> :

$$\kappa_{Platte}(E_{\gamma}) = \frac{1 - e^{-x}}{x} \quad \text{mit } x = \frac{\mu(E_{\gamma})}{\rho} \cdot \rho \cdot d \quad 3.14$$

$$\kappa_{Zylinder}(E_{\gamma}) = \frac{2[I_1(x) - L_1(x)]}{x} \quad \text{mit } x = \frac{\mu(E_{\gamma})}{\rho} \cdot \rho \cdot D \quad 3.15$$

Hierbei ist  $\frac{\mu(E_{\gamma})}{\rho}$  der spezifische Massenschwächungskoeffizient ( $\text{cm}^2 \text{g}^{-1}$ ),  $\rho$  die Dichte ( $\text{g cm}^{-3}$ ),  $d$  (cm) die Dicke der Platte,  $D$  der Durchmesser des Zylinders,  $I_1(x)$  und  $L_1(x)$  die modifizierten Bessel- und die modifizierte Struve-Funktion der ersten Ordnung <sup>64</sup>.

<sup>63</sup> D. Reilly, N. Ensslin, H. Smith Jr., S. Kreiner: *Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials*, Los Alamos National Laboratory, United States (1991)

<sup>64</sup> C. Agarwal, S. Poi, A. Goswami, M. Gathibandhe, R.A. Agrawal: *A simple numerical method for gamma-ray self-attenuation correction for samples of common geometries*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 597 page 198–202, 2008.

### 3.4.2 NEUTRONEN-SELBSTABSORPTION

In dieser Arbeit wird die Neutronen-Selbstabsorption für eine endlich ausgedehnte Platte ( $f_{Platte}$ ) und für einen endlich ausgedehnten Zylinder ( $f_{Zylinder}$ ) verwendet. Der relative Absorptionsfaktor  $f$  basiert auf der Neutronen-Selbstabsorptionstheorie für einfache Geometrien und ist wie folgt definiert <sup>65 66 67</sup>:

$$f = \frac{\bar{\Phi}}{\bar{\Phi}_0} \quad 3.16$$

Hierbei ist  $\bar{\Phi}$  der mittlere thermische Neutronenfluss in der Matrix und  $\bar{\Phi}_0$  der mittlere thermische Neutronenfluss in der Referenz-Matrix.

Aufgrund der komplexen Streu- und Moderationsprozesse muss eine Fallunterscheidung getroffen werden: Die Neutronen-Selbstabsorption einer Probe in einem parallelen Neutronenstrahl und in einem isotropen Neutronenfeld. Für den Fall einer endlich ausgedehnten Platte in einem monoenergetischen isotropen Neutronenfeld  $f_{Platte,Iso}$  bzw. in einem parallelen Neutronenstrahl  $f_{Platte,Para}$  gilt <sup>65 66 67</sup>:

$$f_{Platte,Iso} = \frac{1}{x} \left[ \frac{1}{2} - E_3(x) \right] \quad \text{mit } x = d\Sigma_a \quad 3.17$$

$$f_{Platte,Para} = \frac{1 - e^{-x}}{x} \quad \text{mit } x = d\Sigma_a \quad 3.18$$

Hierbei ist  $x$  der dimensionslose Geometriefaktor für die Größe der Probe,  $E_3(x)$  das tabulierte exponentielle Integral (AMS-55) <sup>68</sup>,  $d$  die Dicke der Probe (cm) und  $\Sigma_a$  der makroskopische Absorptionswirkungsquerschnitt ( $\text{cm}^{-1}$ ).

Für den Fall eines endlich ausgedehnten Zylinders in einem monoenergetischen isotropen Neutronenfeld  $f_{Zylinder,Iso}$  bzw. in einem parallelen Neutronenstrahl  $f_{Zylinder,Para}$  gilt <sup>65</sup>:

$$f_{Zylinder,Iso} \cong \frac{R \cdot f(x)_{Scheibe} + L \cdot f(x)_{Zylinder}}{R + L} \quad \text{mit } x = \frac{R \cdot L}{R + L} \Sigma_a \quad 3.19$$

$$f_{Zylinder,Para} = \frac{2}{x} [I_1(x) - L_1(x)] \quad \text{mit } x = 2R\Sigma_a \quad 3.20$$

Hierbei ist  $R$  der Zylinderradius (cm),  $L$  die Länge des Zylinders,  $f(x)_{Scheibe}$  <sup>65</sup> der Selbstabsorptionsfaktor der Grundfläche des Zylinders ( $\text{cm}^2$ ),  $f(x)_{Zylinder}$  <sup>65</sup> der

<sup>65</sup> Fleming, F.R.: *Neutron Self-Shielding Factors for Simple Geometries*. Int. J. Appl. Radiat. Isot. Vol. 33. pp. (1982)

<sup>66</sup> Richard M. Lindstrom, Ronald F. Fleming.: *Neutron Self-Shielding Factors for Simple Geometries, Revisited* (2008) Chem. Anal. (Warsaw), 53, 855

<sup>67</sup> A. Trkov, G. Zerovnik, L. Snoj, M. Ravnik: On the self-shielding factors in neutron activation analysis, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 610, page 553–565, 2009.

<sup>68</sup> M. Abramowitz and I.A. Stegun: *Handbook of Mathematical Functions*. U.S. Govt. Printing Office, Washington, DC, 1964.

Selbstabsorptionsfaktor der Mantelfläche des Zylinders ( $\text{cm}^2$ ),  $I_1$  ist die modifizierte Struve-Funktion und  $L_1$  die Bessel-Funktion der ersten Ordnung.

### 3.5 DETEKTOR-EFFIZIENZ GROßVOLUMIGER PROBEN

Die Detektor-Effizienz einer  $\gamma$ -Linie  $\varepsilon_{E\gamma}$ , die aus dem Stahlfass bzw. der Matrix emittiert wird, wird mittels einem numerischen Programm, basierend auf folgender Gleichung, berechnet<sup>5 56 57</sup>:

$$\varepsilon_{E\gamma} = \frac{\varepsilon_{0E\gamma}}{n} \cdot \sum_{i=1}^n \left(\frac{d_0}{d_i}\right)^2 \cdot e^{-\left(\frac{\mu}{\rho_c} \cdot \rho_c \cdot l_i\right)} \cdot e^{-\left(\frac{\mu}{\rho_d} \cdot \rho_d \cdot k_i\right)} \quad 3.21$$

Hierbei ist  $\varepsilon_{0E\gamma}$  die Detektor-Effizienz einer  $\gamma$ -Linie einer Punktquelle mit dem Abstand  $d_0$  (cm) zur Oberfläche des Detektors,  $n$  die Anzahl simulierter Punktquellen im Stahlfass bzw. der Matrix,  $d_i$  (cm) der Abstand zwischen der  $i$ -ten Punktquelle und der Detektoroberfläche,  $\rho_c$  und  $\rho_d$  ( $\text{g cm}^{-3}$ ) die Dichte sowie die zugehörigen Massenschwächungskoeffizienten  $^{34} \frac{\mu}{\rho_c}$  und  $\frac{\mu}{\rho_d}$  ( $\text{cm}^2 \text{g}^{-1}$ ) der Matrix und des Stahlfasses der jeweiligen  $\gamma$ -Linie und  $l_i$  und  $k_i$  die Weglängen der  $\gamma$ -Strahlen der  $i$ -ten Punktquelle durch die Matrix und das Stahlfass auf dem Weg zur Detektoroberfläche.

Die Detektor-Effizienz  $\varepsilon_{0E\gamma}$  für  $\gamma$ -Linien mit Energien weniger als 2 MeV wurde durch die Messungen von  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  Prüfstrahlern ermittelt. Die Bestimmung der Detektor-Effizienz  $\varepsilon_{0E\gamma}$  bis 10 MeV erfolgte mittels der Bestrahlung einer NaCl-Probe (900 g) in der Mitte der Bestrahlungskammer sowie einer gesonderten Bestrahlung eines leeren 200 l Stahlfasses<sup>27</sup>. Hierbei wurden jeweils die prompten  $\gamma$ -Linien von  $^{35}\text{Cl}$  der NaCl-Probe und die von  $^{56}\text{Fe}$  des leeren Stahlfasses gemessen. Anschließend wurden die Zählraten der prompten  $\gamma$ -Linien mit der Detektor-Effizienz normiert. Mittels der Prüfstrahler (Energien weniger als 2 MeV) wurde die Korrektur in Bezug auf Geometrie und  $\gamma$ -Absorption, für die prompten  $\gamma$ -Linien der Isotope  $^{35}\text{Cl}$  und  $^{56}\text{Fe}$ , durchgeführt<sup>5 56 57</sup>.

Die numerische Simulation wird aufgrund der Symmetrie der Mittellinie zum HPGe-Detektor für das halbe Volumen der Matrix und des Stahlfasses durchgeführt. Die Simulation des Stahlfasses beinhaltet neben der Fasswand auch den Boden sowie den Deckel inklusive der Greifringe<sup>27</sup>. Die Anzahl an simulierten Punktquellen für die Matrix beträgt  $21,6 \cdot 10^6$  und für das Stahlfass  $3,8 \cdot 10^6$ . Das ursprüngliche Modell war in der Sprache Visual-Basic (VB) programmiert und wurde im Rahmen dieser Arbeit in die Programmiersprache C++ übertragen, was eine Verkürzung der Rechenzeit, für 1.000  $\gamma$ -Linien, von ursprünglich 12 Stunden auf unter 1 Minute zur Folge hatte.



## 4 DIE-AWAY-TIME THERMISCHER NEUTRONEN

Die Aufnahme von verzögerten  $\gamma$ -Spektren, ohne interferierende prompt  $\gamma$ -Strahlung, erfordert das nahezu vollständige Abklingen des thermischen Neutronenflusses. Aufgrund dessen ist es notwendig, eine Wartezeit für die Akquisition der verzögerten  $\gamma$ -Strahlung nach Ende des Neutronenpulses einzuhalten. Diese Wartezeit wird aus dem Abklingverhalten der Die-Away Time thermischer Neutronen abgeleitet.

Das Abklingverhalten der thermischen Neutronen in homogenen Proben (leere Bestrahlungskammer, leeres Fass, Probe HC, Probe HP) sowie in den symmetrischen Proben aus Beton und PE (siehe Kapitel 2.2.1) wird durch die Messung der entsprechenden prompten  $\gamma$ -Spektren studiert. Diese werden nach verschiedenen Wartezeiten nach dem Neutronenpuls aufgenommen und anschließend die Die-Away Time anhand der zeitabhängigen Zählraten ausgewählter prompter  $\gamma$ -Linien bestimmt <sup>62</sup>.

### 4.1 EXPERIMENTELLE BESTIMMUNG DER DIE-AWAY TIME

Für die Bestimmung der Die-Away Time wurden die Zählraten der prompten  $\gamma$ -Linien repräsentativer Isotope der Bestrahlungskammer sowie der Probenmatrix und des Probenfasses herangezogen. Zu diesen Isotopen zählen  $^1\text{H}$  (2223,2 keV),  $^{10}\text{B}$  (477,6 keV),  $^{12}\text{C}$  (3683,9 keV und 4945,3 keV),  $^{28}\text{Si}$  (3538,9 keV),  $^{35}\text{Cl}$  (1164,8 keV),  $^{40}\text{Ca}$  (1942,6 keV) und  $^{56}\text{Fe}$  (352,3 keV; 691,9 keV und 7631,5 keV).

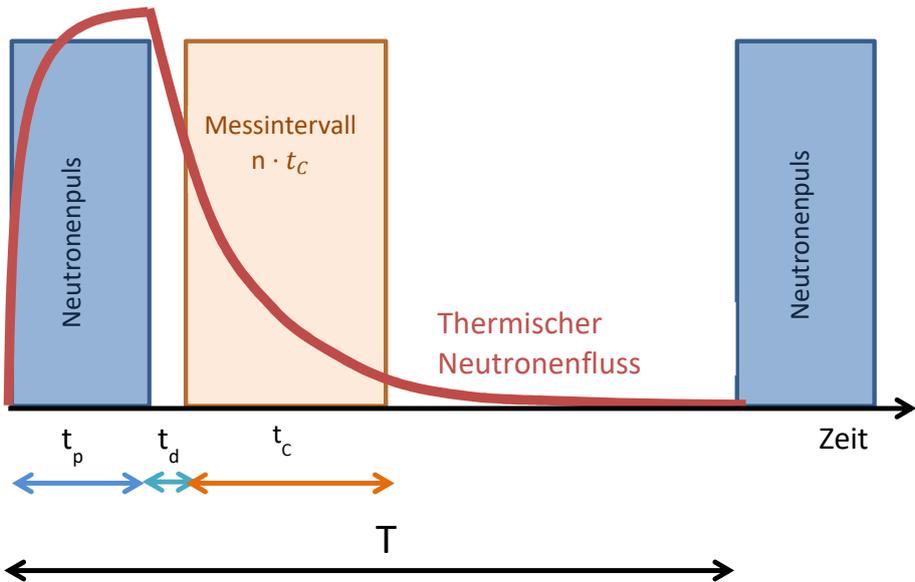
Um ein besseres Verständnis für die Entstehungsorte der Prompt- $\gamma$ -Strahlung zu erhalten, sind die aufgeführten Isotope mit ihren zugehörigen Materialien und Anlagenkomponenten in Tabelle 4.1 aufgezeigt. Die repräsentativen Isotope der Proben und der Anlagenmaterialien sind nicht eindeutig voneinander abgegrenzt. So ist beispielsweise  $^1\text{H}$  sowohl im Beton, als auch im PE aber auch im CFRP (Carbon fibre reinforced plastic) der Anlage zu finden. Das für die MEDINA Einrichtung verwendete hochreine Graphit enthält geringfügige Verunreinigungen <sup>4 5</sup>. Zu den Verunreinigung zählen beispielsweise Bor (ca. 2 ppm) sowie Chlor (ca. 2 ppm). Die Grundplatte des Graphitdeckels besteht aus CFRP und besitzt einen Kohlenstoffanteil von 92 %. Die verbleibenden 8 % setzen sich aus H (2,9 %), B (ca. 2 ppm), N (4,9 %) und Cl (ca. 0,2 %) zusammen<sup>4</sup>.

**Tabelle 4.1:** Entstehungsorte der Prompt- $\gamma$ -Strahlung relevanter Isotope der Probe und der Anlage. (Die in der Tabelle geklammerten Begriffe bedeuten, dass der Anteil der dort produzierten  $\gamma$ -Strahlung zweitrangig ist, aufgrund des geringen Massenanteils, aber dennoch bei der Aufnahme des Prompt- $\gamma$ -Spektrums nicht vernachlässigt werden kann.)

Isotop	$E_\gamma$ (keV)	Vorkommen in der Probe	Komponente der MEDINA Einrichtung
H-1	2223,2	Beton, PE	CFRP
B-10	477,6	Beton	Graphit (CFRP)
C-12	3683,9 4945,3	(PE)	Graphit (CFRP)
Si-28	3538,9	Beton	Neutronenabschirmung
Cl-35	1164,8	-	CFRP (Graphit)
Ca-40	1942,6	Beton	Graphit
Fe-56	352,3 691,9 7645,5	Stahlfass	(Neutronengenerator)

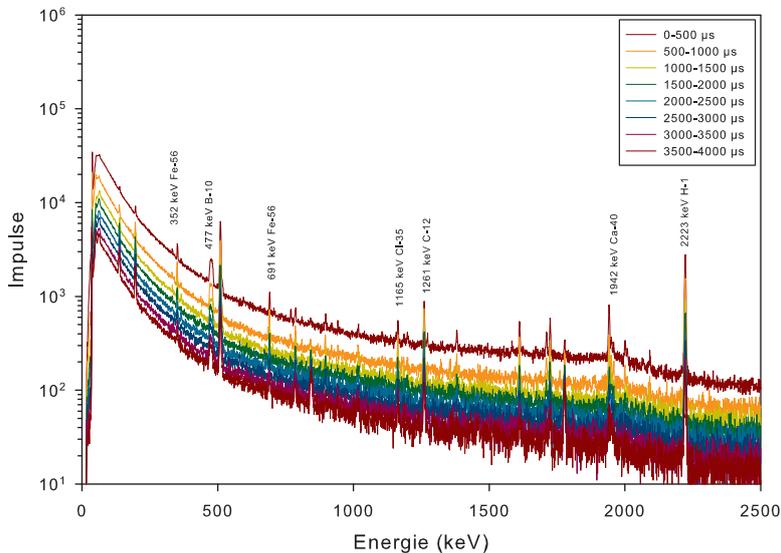
Für die Bestimmung der *Die-Away Time* ist es notwendig, die Pulsperiode so lange zu wählen, dass sich kein thermisches Neutronenfeld in der Einrichtung und der Probe aufbaut, sondern das nach dem Neutronenpuls entstandene thermische Neutronenfeld mit der Zeit abklingen kann.

Abbildung 4.1 zeigt schematisch die Sequenz der gewählten Mess- und Bestrahlungsparameter für die Bestimmung der Die-Away Time thermischer Neutronen. Der Neutronengenerator wurde mit einer Beschleunigungsspannung von 85 kV und einem Ionenstrom von 40  $\mu$ A betrieben. Dies entspricht einer Neutronenemission von ca.  $8 \cdot 10^7 \text{ ns}^{-1}$ . Die Pulslänge betrug 250  $\mu$ s und die Repetitionszeit 5 ms. Das Messfenster zur Akquisition der prompten  $\gamma$ -Spektren  $t_c$  betrug 500  $\mu$ s. Dieses Messfenster wurde sukzessive mit jeder weiteren Messung auf der Zeitachse mit  $n \cdot t_c$  (mit  $n=0, 1, 2, \dots$ ) nach hinten verschoben. So konnte ein Bereich zwischen 0-4500  $\mu$ s nach dem Puls für die Messungen der Prompt- $\gamma$ -Strahlung der bestrahlten Proben (Leere Kammer, Leeres Fass, HC, Ra1-Ra6 und Ax1-Ax4) abgedeckt werden. Für die Messung des Fasses gefüllt mit PE (Probe HP) wurde innerhalb der ersten 1 ms eine Verzögerung von 250  $\mu$ s gewählt. Anschließend wurden ebenfalls in 500  $\mu$ s Schritten die prompten  $\gamma$ -Spektren aufgenommen. Für diese Messung wurde ein Bereich von 0-3000  $\mu$ s abgedeckt. Die Messzeit pro Messintervall betrug jeweils 360 s, dies entspricht einer Gesamtexperimentierzeit von 3600 s pro Probe.



**Abbildung 4.1:** Schematische Darstellung der Sequenz für die Akquisition der prompten  $\gamma$ -Spektren zur Bestimmung der Die-Away Time thermischer Neutronen.

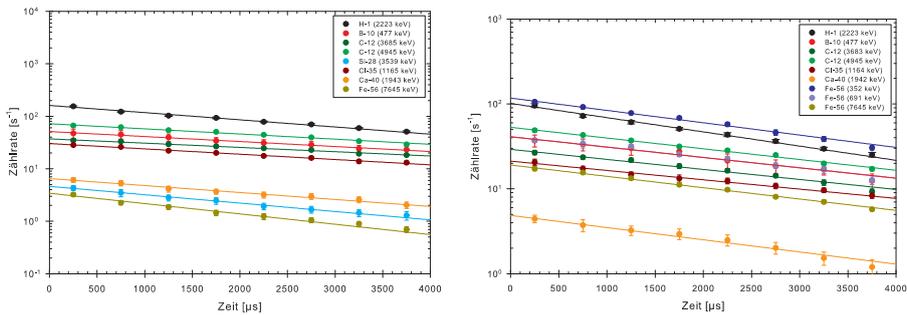
Als Beispiel zeigt Abbildung 4.2 die für verschiedene Wartezeiten nach dem Ende des Neutronenpulses gemessenen prompten  $\gamma$ -Spektren des Fasses gefüllt mit Beton (Probe HC Tabelle 2.3). Die Abnahme der prompten  $\gamma$ -Strahlung bzw. der Impulse der  $\gamma$ -Linien spiegelt das Abklingen des thermischen Neutronenflusses wider.



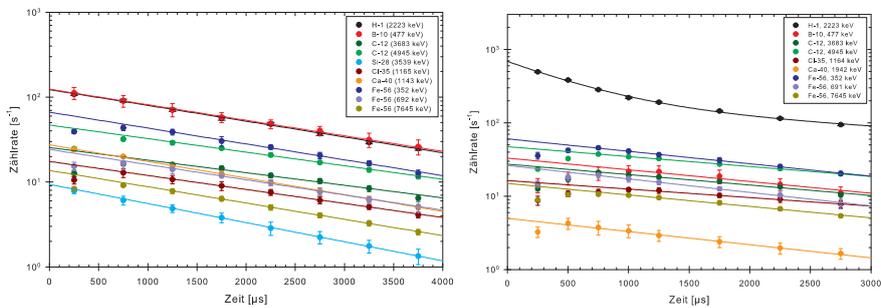
**Abbildung 4.2:**  $\gamma$ -Spektren der Beton-Probe (Probe HC Tabelle 2.3) im Energiebereich 100-2500 keV für verschiedene Wartezeiten nach Ende der Neutronenpulse.

## 4.2 ERGEBNISSE DER DIE-AWAY TIME

Die Zeitabhängigkeit der Zählraten der ausgewählten prompten  $\gamma$ -Linien ist in Abbildung 4.3 für die leere Bestrahlungskammer und das leere Stahlfass und in Abbildung 4.4 für die homogene Beton- und PE-Probe (Probe HC & HP Tabelle 2.3) gezeigt <sup>69</sup>. Die resultierenden Werte der Die-Away Time sind in Tabelle 4.2 gegeben. Im Fall der leeren Bestrahlungskammer und des leeren Stahlfasses klingen in dem gesamten beobachteten Messzeitraum die Zählraten aller prompten  $\gamma$ -Linien einfach exponentiell ab. Gemäß dem Entstehungsort der  $\gamma$ -Linien werden für die leere Bestrahlungskammer und für das leere Fass unterschiedliche Werte für die Die-Away Time beobachtet.



**Abbildung 4.3:** Zeitabhängigkeit der prompten  $\gamma$ -Zählrate der ausgewählten Prompt- $\gamma$ -Linien für das leere Bestrahlungskammer (links) und das leere Stahlfasses (rechts). (Log-Lin Darstellung)



**Abbildung 4.4:** Zeitabhängigkeit der prompten  $\gamma$ -Zählrate der ausgewählten Prompt- $\gamma$ -Linien für die Beton- (links) und die PE-Probe (Probe HC & HP Tabelle 2.3). (Log-Lin Darstellung)

<sup>69</sup> Mildenberger F. & Mauerhofer E. J Radioanal Nucl Chem (2016) 307:661. Doi: 10.1007/s10967-015-4178-2

**Tabelle 4.2:** Die-Away Time thermischer Neutronen für die leere Bestrahlungskammer, das leere Stahlfass, die Beton- und die PE-Probe (Probe HC & HP Tabelle 2.3).

Iso- tope	E <sub>γ</sub> (keV)	Leere Kammer		Leeres Fass		Probe HC		Probe HP	
		Λ (ms)	R <sup>2</sup>	Λ (ms)	R <sup>2</sup>	Λ (ms)	R <sup>2</sup>	Λ (ms)	R <sup>2</sup>
<sup>1</sup> H	2223,2	-	-	-	-	-	-	0,59 ± 0,04	-
		3,16 ± 0,16	0,977	2,59 ± 0,01	0,991	2,34 ± 0,05	0,998	2,32 ± 0,07	0,998
<sup>10</sup> B	477,6	4,56 ± 0,20	0,949	3,56 ± 0,25	0,959	2,37 ± 0,04	0,999	2,72 ± 0,19	0,949
<sup>12</sup> C	3683,9	5,30 ± 0,22	0,970	3,54 ± 0,10	0,991	2,83 ± 0,07	0,989	3,16 ± 0,06	0,978
		4945,3	5,25 ± 0,28	0,968	3,43 ± 0,09	0,991	2,77 ± 0,08	0,997	3,21 ± 0,05
<sup>28</sup> Si	3538,9	2,71 ± 0,01	0,994	-	-	2,00 ± 0,02	0,999	-	-
<sup>35</sup> Cl	1164,8	4,28 ± 0,13	0,975	3,53 ± 0,16	0,990	2,63 ± 0,05	0,998	2,92 ± 0,13	0,991
<sup>40</sup> Ca	1942,6	3,27 ± 0,17	0,975	3,32 ± 0,22	0,957	2,21 ± 0,03	0,999	2,42 ± 0,06	0,994
<sup>56</sup> Fe	352,3	-	-	3,28 ± 0,12	0,981	2,32 ± 0,05	0,997	2,46 ± 0,05	0,997
		691,9	-	3,38 ± 0,21	0,969	2,32 ± 0,06	0,995	2,36 ± 0,05	0,996
		7645,5	2,48 ± 0,09	0,987	3,25 ± 0,10	0,985	2,31 ± 0,06	0,997	2,44 ± 0,06

R<sup>2</sup> ist der Koeffizient für die Qualität des Fits der Daten mittels einer einfachen Exponentialfunktion.

Die höchsten Werte der Die-Away Time erhält man von den <sup>12</sup>C γ-Linien resultierend aus der geringen Absorptions- sowie der hohen Streueigenschaft des Graphits für thermische Neutronen. Die Die-Away-Time der <sup>1</sup>H γ-Linie ist repräsentativ für das Verhalten thermischer Neutronen im CFRP. Die Die-Away Time der γ-Linien von <sup>10</sup>B und <sup>35</sup>Cl liegen zwischen den Werten von <sup>1</sup>H und <sup>12</sup>C. Der Grund dafür ist, da <sup>10</sup>B und <sup>35</sup>Cl sowohl im Graphit als auch im CFRP enthalten sind. Der geringste Wert der Die-Away Time wurde für die hochenergetische γ-Linie von <sup>56</sup>Fe ermittelt und resultiert aus dem hohen Absorptionsvermögen für thermischer Neutronen des Eisens im Stahlmantel des Neutronengenerators.

Die Interpretation der Die-Away Time der γ-Linien von <sup>28</sup>Si und <sup>40</sup>Ca ist aufgrund der unterschiedlichen möglichen Entstehungsorte nicht trivial. Aufgrund der 50 % geringeren Die-Away-Time-Werte von <sup>28</sup>Si und <sup>40</sup>Ca, relativ zu den Die-Away-Time-Werten der Graphitkammer, lässt sich vermuten, dass die thermischen Neutronen nicht im Graphit oder dem CFRP absorbiert werden, sondern in der näheren Umgebung der Bestrahlungskammer. Für <sup>28</sup>Si wäre dies möglicherweise die vorhandene Neutronenabschirmung für thermische Neutronen (<sup>6</sup>LiF-Abschirmung) um den Detektor und für <sup>40</sup>Ca der Betonboden auf dem die MEDINA-Einrichtung aufgebaut ist.

Die Anwesenheit des leeren Stahlfasses induziert ein homogenes Abklingen des thermischen Neutronenfeldes im Gesamtsystem. Es kann hier eine mittlere Die-Away Time für das Gesamtsystem ermittelt werden, welche dem Wert der Die-Away Time der γ-Linien von <sup>56</sup>Fe relativ ähnlich ist. Dieses Verhalten ist bedingt durch die hohe Absorptions- und die geringe Streueigenschaft für thermische Neutronen von Eisen. Vergleicht man die Werte der Die-Away Time der leeren Kammer mit denen des leeren Fasses, so erkennt man, dass die Werte hierfür bei den CFRP-Komponenten um 19 % und für Graphit um 34 % reduziert sind.

Im Fall der Beton-Probe (Probe HC Tabelle 2.3) können zwei Gruppen von γ-Linien mit unterschiedlichem zeitabhängigen Verhalten der Zählrate beobachtet werden. Die erste Gruppe besteht aus den γ-Linien von <sup>1</sup>H, <sup>10</sup>B, <sup>28</sup>Si und <sup>40</sup>Ca, die überwiegend aus der Betonmatrix

emittiert sind. Die Zählraten dieser  $\gamma$ -Linien fallen mit ähnlichen Werte für die Die-Away Time exponentiell ab. Diese Werte ergeben für Beton eine mittlere Die-Away Time von  $2,23 \pm 0,17$  ms.

Die zweite Gruppe besteht aus den  $\gamma$ -Linien der Isotope  $^{12}\text{C}$ ,  $^{35}\text{Cl}$  und  $^{56}\text{Fe}$ , die überwiegend von der Anlage und vom Stahlfass emittiert sind. Bei der Zählrate lässt sich zunächst, aufgrund der Beeinflussung der thermischen Neutronenenergieverteilung durch den vorhandenen Beton eine Erhöhung der Zählrate bis ca. 1 ms nach dem Neutronenpulsende, beobachten. Nachdem dieser Anstieg der Zählrate nach ca. 1 ms sein Maximum erreicht hat, erfolgt die Abnahme der Zählrate nach dem einfachen exponentiellen Zerfall bis zum Ende des betrachteten Messzeitraums.

Der thermische Neutronenfluss im Stahlfass klingt mit einer Die-Away Time von 2,32 ms ab und ist ähnlich dem Wert der Die-Away Time im Beton. Die Die-Away Time des Stahlfasses ist um ca. 30 % niedriger als diejenige des leeren Stahlfasses. Die Die-Away Time der Komponenten des Graphits und des CFRP sind hingegen etwas höher. Es kann ein Wert für die mittlere Die-Away Time für das Gesamtsystem von 2,41 ms ermittelt werden, was ca. 27 % unter dem Wert des Gesamtsystems der Messung mit dem leeren Fass im Inneren der Bestrahlungskammer entspricht.

Für die PE-Probe (Probe HP Tabelle 2.3) kann die Abnahme der Zählrate der  $\gamma$ -Linie von  $^1\text{H}$  durch eine doppelte Exponentialfunktion beschrieben werden. Es ergeben sich hieraus eine *schnelle Komponente* sowie eine *langsame Komponente* für die Die-Away Time. Der Wert der schnellen Komponente beträgt 0,59 ms und resultiert aus der raschen Thermalisierung von schnellen Neutronen in Polyethylen. Der Wert der langsamen Komponente beträgt 2,32 ms und ist dem Verhalten der Betonmatrix ähnlich. Die Zählraten der  $\gamma$ -Linien die von den Isotopen der Anlage und des Stahlfasses emittiert werden, zeigen den gleichen Trend wie er bereits zuvor bei der Beton-Probe (Probe HC Tabelle 2.3) beobachtet werden konnte. Es kann auch hier ein Anstieg der Zählrate im Zeitraum bis ca. 1 ms sowie die anschließende einfache exponentielle Abnahme der Zählrate beobachtet werden. Die Die-Away Time der  $\gamma$ -Linien der Isotope der Anlage und des Stahlfasses sind zwischen 6 % bis 16 % höher als bei der Messung der Probe HC. Dies resultiert aus dem höheren Streuvermögen des Wasserstoffs des PE für thermische Neutronen. Der Wert der mittleren Die-Away Time für das Gesamtsystem beläuft sich für die Messung des Fasses gefüllt mit PE auf  $2,67 \pm 0,35$  ms und ist damit 20 % niedriger als der mittlere Wert für das Gesamtsystem der Messung mit dem leeren Fass.

Die Ergebnisse der Bestimmung der Die-Away Time symmetrischer Proben aus Beton und PE (siehe Kapitel 2.2.1), sind in Tabelle 4.3 (Proben Ra1, Ra2, Ra3), in Tabelle 4.4 (Proben Ra4, Ra5, Ra6) und in Tabelle 4.5 (Proben Ax1, Ax2, Ax3 und Ax4) zusammengefasst.

**Tabelle 4.3:** Die-Away Time thermischer Neutronen der Proben Ra1, Ra2 und Ra3.

Isotope	E $\gamma$ (keV)	Probe Ra1		Probe Ra2		Probe Ra3	
		$\Lambda$ (ms)	R <sup>2</sup>	$\Lambda$ (ms)	R <sup>2</sup>	$\Lambda$ (ms)	R <sup>2</sup>
<sup>1</sup> H	2223,2	0,70±0,04	0,997	0,74±0,02	0,999	0,69±0,03	0,998
		2,25±0,13		2,49±0,08		2,27±0,09	
<sup>10</sup> B	477,6	2,21±0,01	0,999	2,12±0,04	0,998	1,99±0,04	0,999
<sup>12</sup> C	3683,9	2,80±0,03	0,998	2,92±0,05	0,996	2,89±0,07	0,997
		4945,3		2,88±0,03		2,90±0,03	
<sup>28</sup> Si	3538,9	1,95±0,02	0,997	2,31±0,03	0,997	2,05±0,05	0,999
<sup>40</sup> Ca	1942,6	2,49±0,03	0,996	2,28±0,02	0,998	1,94±0,04	0,999
		352,3		2,38±0,05		2,38±0,05	
<sup>56</sup> Fe	691,9	2,38±0,04	0,996	2,32±0,06	0,996	2,39±0,02	0,995
		7645,5		2,36±0,05		2,30±0,07	

**Tabelle 4.4:** Die-Away Time thermischer Neutronen der Proben Ra4, Ra5 und Ra6.

Isotope	E $\gamma$ (keV)	Probe Ra4		Probe Ra5		Probe Ra6	
		$\Lambda$ (ms)	R <sup>2</sup>	$\Lambda$ (ms)	R <sup>2</sup>	$\Lambda$ (ms)	R <sup>2</sup>
<sup>1</sup> H	2223,2	0,58±0,05	0,998	0,61±0,07	0,997	0,60±0,02	0,997
		2,41±0,11		2,48±0,18		2,32±0,17	
<sup>10</sup> B	477,6	2,03±0,07	0,995	1,97±0,02	0,998	1,98±0,03	0,999
<sup>12</sup> C	3683,9	3,03±0,02	0,999	2,90±0,05	0,996	2,98±0,02	0,998
		4945,3		3,06±0,03		2,85±0,05	
<sup>28</sup> Si	3538,9	1,80±0,05	0,997	2,11±0,03	0,998	2,11±0,05	0,998
<sup>40</sup> Ca	1942,6	2,27±0,08	0,994	2,14±0,02	0,999	2,06±0,04	0,998
		352,3		2,28±0,05		2,26±0,06	
<sup>56</sup> Fe	691,9	2,22±0,04	0,999	2,28±0,07	0,995	2,35±0,06	0,997
		7645,5		2,21±0,04		2,24±0,06	

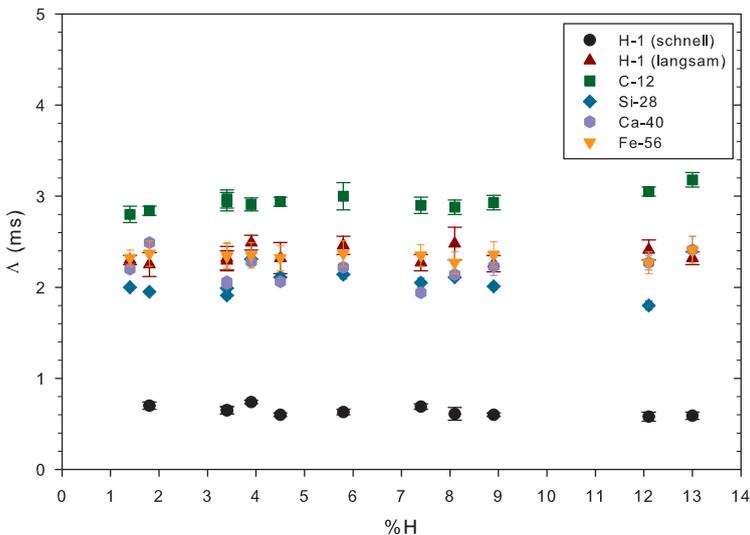
**Tabelle 4.5:** Die-Away Time thermischer Neutronen der Proben Ax1, Ax2, Ax3 und Ax4.

Isotope	E $\gamma$ (keV)	Probe Ax1		Probe Ax2		Probe Ax3		Probe Ax4	
		$\Lambda$ (ms)	R <sup>2</sup>						
<sup>1</sup> H	2223,2	0,65±0,04	0,997	0,65±0,04	0,997	0,63±0,03	0,999	0,60±0,02	0,999
		2,29±0,11		2,32±0,13		2,46±0,10		2,26±0,09	
<sup>10</sup> B	477,6	1,81±0,07	0,994	1,90±0,07	0,994	1,97±0,02	0,999	1,84±0,07	0,995
<sup>12</sup> C	3683,9	2,98±0,08	0,996	3,00±0,11	0,996	3,02±0,11	0,995	2,90±0,03	0,997
		4945,3		2,90±0,07		2,95±0,09		0,996	
<sup>28</sup> Si	3538,9	1,91±0,04	0,997	1,99±0,04	0,997	2,14±0,04	0,998	2,01±0,04	0,997
<sup>40</sup> Ca	1942,6	2,04±0,04	0,998	2,06±0,04	0,998	2,22±0,05	0,998	2,23±0,10	0,990
		352,3		2,33±0,09		2,36±0,09		0,995	
<sup>56</sup> Fe	691,9	2,37±0,08	0,996	2,31±0,08	0,996	2,33±0,09	0,995	2,38±0,06	0,999
		7645,5		2,38±0,09		2,35±0,09		0,995	

*R<sup>2</sup> ist der Koeffizient für die Qualität des Fits der Daten mittels einer einfachen Exponentialfunktion.*

Es konnten für alle Messungen der symmetrischen Proben, analog zu den vorherigen Messungen zur Die-Away Time (leere Bestrahlungskammer, leeres Fass, Beton-Probe, PE-Probe), ähnliche Ergebnisse beobachtet werden. Es konnten ebenfalls die zwei Gruppen von  $\gamma$ -Linien mit unterschiedlichem zeitabhängigem Verhalten der Zählrate beobachtet werden. Alle Die-Away Times liegen zwischen den Die-Away Times der Beton-Probe und der PE-Probe (Probe HC & HP Tabelle 2.3). Zudem kann für alle symmetrischen Proben analog zur PE-Probe (Probe HP Tabelle 2.3) die Abnahme der Zählrate der  $\gamma$ -Linie von  $^1\text{H}$  durch eine doppelte Exponentialfunktion beschrieben werden. Hieraus können ebenfalls die schnelle und langsame Komponente für die Die-Away Time von  $^1\text{H}$  ermittelt werden. Der Wert der Die-Away Time der schnellen Komponente liegt zwischen 0,58 ms und 0,78 ms und resultiert aus der raschen Thermalisierung von schnellen Neutronen im PE-Anteil der Proben, respektive der höheren Wasserstoffkonzentration in der Mischkonfiguration gegenüber reinem Beton. Die Werte der langsamen Komponente betragen 2,26 ms bis 2,49 ms und sind damit dem Verhalten der Beton-Probe und der PE-Probe relativ ähnlich.

Abbildung 4.5 stellt die Werte der Die-Away Time der relevanten  $\gamma$ -Linien ( $^1\text{H}$ ,  $^{12}\text{C}$ ,  $^{28}\text{Si}$ ,  $^{40}\text{Ca}$  und  $^{56}\text{Fe}$ ) der Mischkonfigurationen als Funktion der Wasserstoffkonzentration gegenüber. Die Abbildung zeigt, dass die Werte der Die-Away Time der ausgewählten  $\gamma$ -Linien relativ konstant sind und damit unabhängig von der Wasserstoffkonzentration und der Heterogenität der Probenmatrix.



**Abbildung 4.5:** Die-Away Time thermischer Neutronen der symmetrischen Proben aus Beton und PE als Funktion der Wasserstoffkonzentration in der Probe.

Die spezifische Die-Away Time thermischer Neutronen der bestrahlten Proben liegt zwischen 2 und 5 ms. Hieraus ergibt sich eine konservative Wartezeit für den Beginn des Messfensters, der Messung verzögerten  $\gamma$ -Linien ohne interferierende prompten  $\gamma$ -Strahlung, von mindestens 12 ms<sup>69</sup>. Dieses Verhalten und die relativ lange Die-Away Time thermischer Neutronen in den Materialien der MEDINA Einrichtung zeigen, dass hauptsächlich die Graphitkammer der Einrichtung die Neutronendynamik im Inneren der Kammer bzw. der Probe beeinflusst. Zudem führen die Werte der Die-Away Time zu dem Schluss, dass diese Einrichtung sehr gut dazu geeignet ist, prompten  $\gamma$ -Strahlung zu messen, da die Lebensdauer thermischer Neutronen sowohl in der Probe als auch in der Kammer relativ hoch ist. Der Nachweis von spaltbarem Material, durch die Messung von Spaltneutronen ist hingegen nicht ohne weiteres möglich. Um beispielsweise thermische Neutronen aus der Moderation schneller Neutronen (z. B. Spaltneutronen) einer Probe messen zu können, müsste die Die-Away Time thermischer Neutronen drastisch reduziert werden und sich in der Größenordnung von wenigen  $\mu$ s befinden.



## 5 PGNAA VON GROßVOLUMIGEN MISCHPROBEN AUS BETON UND POLYETHYLENE

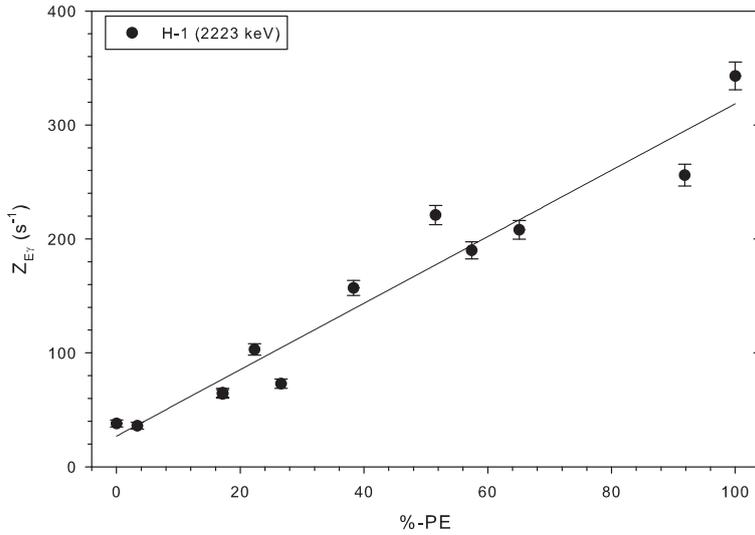
Es wurden Mischproben, bestehend aus unterschiedlichen symmetrischen (siehe Kapitel 2.2.1) und asymmetrischen (siehe Kapitel 2.2.2) Konfigurationen aus Beton und Polyethylene (PE) in 200 l Stahlfässern, mittels der PGNAA in der MEDINA Einrichtung untersucht.

Für die Bestrahlung der symmetrischen und asymmetrischen Proben wurde ein 50  $\mu$ s Neutronenpuls mit einer Repetitionsperiode von 1 ms am Neutronengenerator eingestellt. Da die Repetitionsperiode kürzer als die Die-Away Time thermischer Neutronen in Beton (2,23 ms) und PE (2,32 ms)<sup>69</sup> ist, stellt sich nach wenigen Neutronenpulsen ein konstanter thermischer und epithermischer Neutronenfluss in der Probe und der Bestrahlungskammer ein. Die Prompt- $\gamma$ -Linien wurden nach einer Wartezeit von 10  $\mu$ s nach dem Neutronenpuls über einen Zeitraum von 940  $\mu$ s zwischen den Neutronenpulsen detektiert.

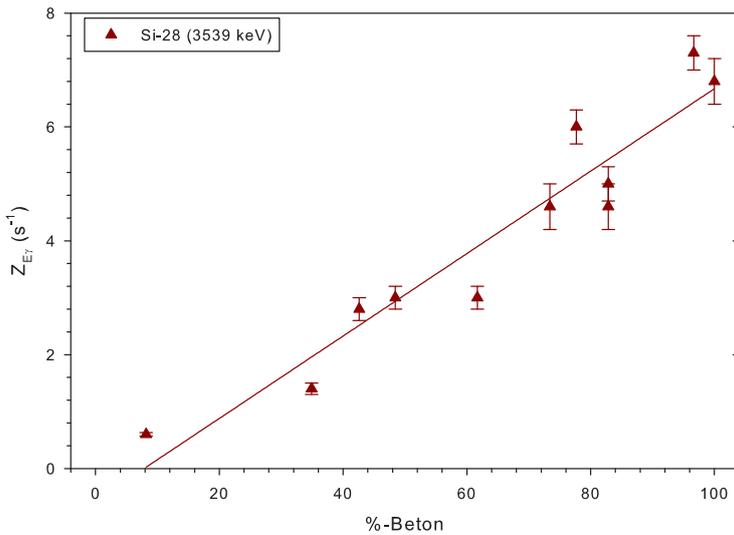
### 5.1 SYMMETRISCHE MATRIXANORDNUNG

Für die symmetrischen Proben wurden die Prompt- $\gamma$ -Linien von  $^1\text{H}$  (2223,2 keV),  $^{10}\text{B}$  (477,6 keV),  $^{28}\text{Si}$  (1273,3, 2092,9, 3538,9 keV),  $^{39}\text{K}$  (770,3 keV),  $^{40}\text{Ca}$  (1942,7, 4418,5 keV) und  $^{48}\text{Ti}$  (1381,7 keV) berücksichtigt. Das Spektrum des Leeren Stahlfasses wurde für die Korrektur der Zählraten der  $\gamma$ -Linien von Wasserstoff, Bor und Titan herangezogen. Die Stoffmenge  $m$  (g) wurde mittels Gleichung 3.4 bestimmt. Die Akquisitionszeit der Spektren der symmetrischen Proben betrug 3600 s.

Die gemessenen Netto-Zählraten der  $\gamma$ -Linien sind im Anhang A03 gegeben. Als Beispiel zeigen Abbildung 5.1 bzw. Abbildung 5.2 die Zunahme der Netto-Zählrate der  $\gamma$ -Linie von  $^1\text{H}$  als Funktion des PE-Anteils bzw. der  $\gamma$ -Linie von  $^{28}\text{Si}$  als Funktion des Betonanteils in der Probe. Eine Quantifizierung von Kohlenstoff in PE ist aufgrund der hohen Untergrundzählrate aus der Aktivierung von  $^{12}\text{C}$  der Graphitkammer nicht möglich.



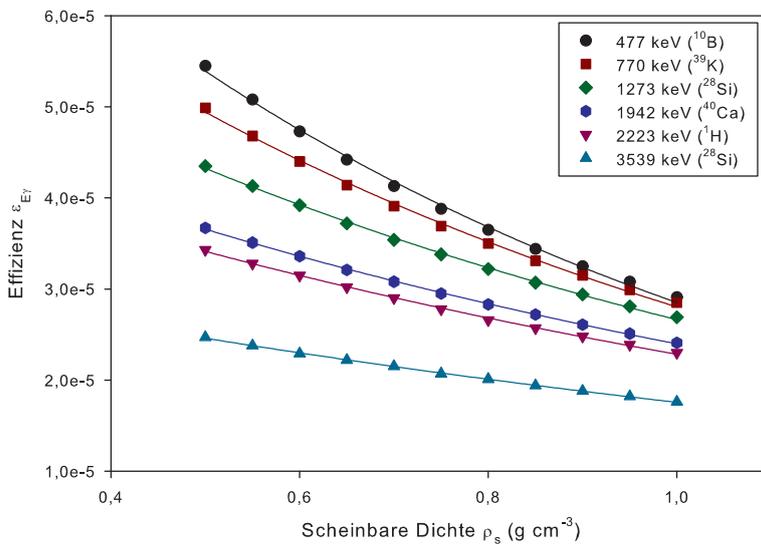
**Abbildung 5.1:** Zählrate der Prompt- $\gamma$ -Linie von  $^1\text{H}$  als Funktion des PE-Anteils der symmetrischen Mischproben. Die Linie stellt den linearen Fit der Daten dar.



**Abbildung 5.2:** Zählrate der Prompt- $\gamma$ -Linie von  $^{28}\text{Si}$  als Funktion des Beton-Anteils der symmetrischen Mischproben. Die Linie stellt den linearen Fit der Daten dar.

### 5.1.1 METHODE ZUR QUANTIFIZIERUNG – SYMMETRISCHE PROBEN

Die Detektor-Effizienzen  $\varepsilon_{E\gamma}$  zum Nachweis der aus dem Stahlfass und der Probe emittierten  $\gamma$ -Strahlung wurde mit Hilfe der numerischen Methode (Kapitel 3.5), unter Berücksichtigung der scheinbaren Dichte der Proben, berechnet. Im Fall der homogenen Beton- und PE-Probe (Probe HC & HP) wurden jeweils die spezifischen Massenschwächungskoeffizienten<sup>34</sup> der Materialien für die Berechnung der  $\gamma$ -Absorption der Matrix herangezogen. Für den Fall der heterogenen Proben wurde die Annahme getroffen, dass der Probeninhalt einer Betonmatrix entspricht. Für die anschließende Berechnung der  $\gamma$ -Absorption wurden die scheinbare Dichte der Probe sowie der spezifische Massenschwächungskoeffizient für Beton verwendet. Abbildung 5.3 zeigt die Abhängigkeit der Detektor-Effizienz der Probenmatrix für die relevanten  $\gamma$ -Linien in Abhängigkeit der scheinbaren Dichte<sup>70</sup>.



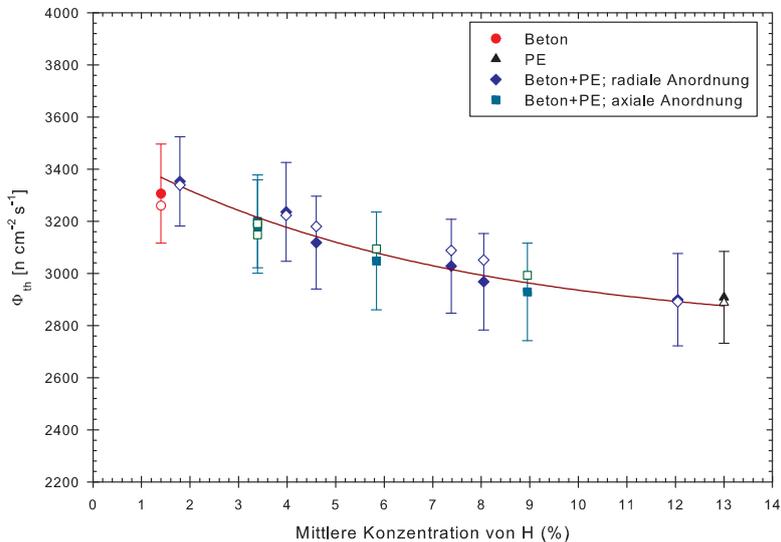
**Abbildung 5.3:** Detektor-Effizienz  $\varepsilon_{E\gamma}$  relevanter  $\gamma$ -Linien der Matrizen aus Beton und PE als Funktion der scheinbaren Dichte  $\rho_s$ . (Die durchgezogene Linie dient der Trenderkennung.)

Die Bestimmung des thermischen Neutronenflusses innerhalb der Probe erfolgt mittels der Prompt- $\gamma$ -Linien von <sup>56</sup>Fe die durch das Stahlfass emittiert sind (Neutronenflussmonitor<sup>4 56</sup>) sowie durch die entsprechenden Werte der Detektor-Effizienz. Die Interferenz auf die <sup>56</sup>Fe Zählrate durch die vorhandene Eisenkonzentration (2,77 %) in Beton kann vernachlässigt werden, da diese Menge an Eisen (5,5 kg) deutlich niedriger ist, als die Masse des Stahlfasses und zudem die Photopeak-Effizienz des Stahlfasses deutlich höher als die der Betonmatrix ist. Abbildung 5.4 zeigt wie sich der thermische Neutronenfluss mit zunehmender Wasserstoffkonzentration in der Probe unabhängig von der Anordnung der Beton und PE-Körpern im Probenfass verringert. Die maximale Abweichung der thermischen

<sup>70</sup> Mildenberger F. & Mauerhofer E. J. Radioanal. Nucl. Chem. (2016) 309:1265. Doi: 10.1007/s10967-016-4743-3

Neutronenflüsse zwischen dem niedrigsten (Fass nur mit Beton gefüllt) und dem höchsten Wert (Fass nur mit PE gefüllt) beträgt  $14 \pm 1 \%$ .

Des Weiteren wurden numerische Simulation der thermischen Neutronenflüsse der betrachteten Proben, unter Verwendung des MCNP-Modells <sup>71</sup> der MEDINA Einrichtung durchgeführt. Die MCNP-Simulationen weisen eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen thermischen Neutronenflüssen auf (Abbildung 5.4). Hieraus kann abgeleitet werden, dass die Substitution einer heterogenen Mischmatrix durch die Annahme einer homogenen Betonmatrix eine valide Annahme darstellt, um die Absorption der Prompt- $\gamma$ -Linien von <sup>56</sup>Fe bzw. die Detektor-Effizienz für das Stahlfasses zu berechnen. Die relative Unsicherheit der Detektor-Effizienz und des thermischen Neutronenflusses betragen 5 % bzw. 8 %. Tabelle 5.1 fasst die experimentell bestimmten und durch MCNP simulierte thermischen Neutronenflüsse sowie das Verhältnis MCNP/Experiment zusammen.



**Abbildung 5.4:** Experimentelle thermische Neutronenflüsse (ausgefüllte Symbole mit Fehlerbalken) und simulierte thermische Neutronenflüsse (nicht-ausgefüllte Symbole) als Funktion der Wasserstoffkonzentration der symmetrischen Proben aus Beton und PE. (Die durchgezogene Linie dient der Trenderkennung.)

<sup>71</sup> Nicol T, Carasco C., Perot B, Ma JL, Payan E, Mauerhofer M, Havenith A, Collot J (2015) Quantitative comparison between PGNAA measurements and MCNPX simulations. J Radioannal Nucl Chem. Doi: 10.1007/s10967-015-4451-4

**Tabelle 5.1:** Experimentelle und MCNP simulierte Neutronenflüsse sowie deren Verhältnis für die symmetrischen Proben aus Beton und PE.

Proben- bezeichnung	$\bar{\Phi}_{th,Exp}$ $\cdot 10^{-3} \text{ (cm}^{-2} \text{ s}^{-1}\text{)}$	$\bar{\Phi}_{th,MCNP}$ $\cdot 10^{-3} \text{ (cm}^{-2} \text{ s}^{-1}\text{)}$	MCNP/Experiment
<b>Leeres Fass</b>	2,8 ± 0,2	2,8	0,99
<b>HC</b>	3,3 ± 0,2	3,3	0,99
<b>HP</b>	2,9 ± 0,2	2,9	0,99
<b>Ra1</b>	3,3 ± 0,2	3,3	1,01
<b>Ra2</b>	3,2 ± 0,2	3,2	1,01
<b>Ra3</b>	3,0 ± 0,2	3,1	1,01
<b>Ra4</b>	2,9 ± 0,2	2,9	0,99
<b>Ra5</b>	3,0 ± 0,2	3,1	1,02
<b>Ra6</b>	3,1 ± 0,2	3,2	1,01
<b>Aa1</b>	3,2 ± 0,2	3,2	0,99
<b>Aa2</b>	3,2 ± 0,2	3,1	0,99
<b>Ax3</b>	3,1 ± 0,2	3,1	0,99
<b>Ax4</b>	2,9 ± 0,2	2,9	1,01

### 5.1.2 ERGEBNISSE DER QUANTIFIZIERUNG

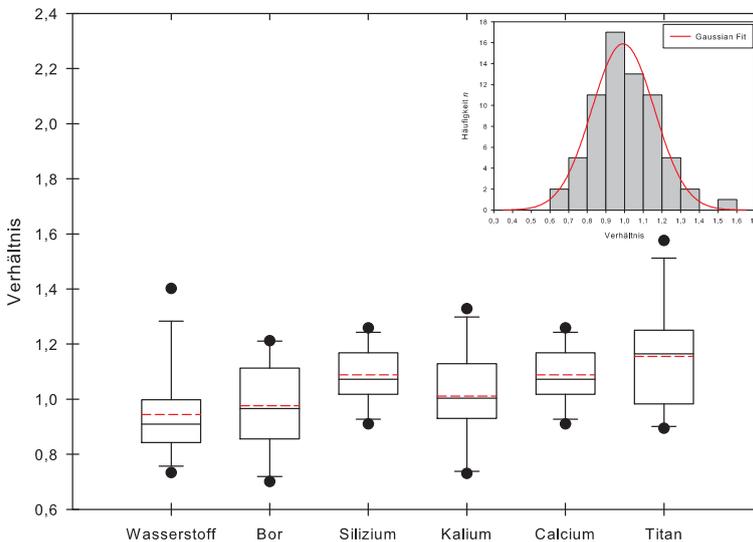
Die Ergebnisse der Quantifizierung der Elementmassen der Proben sind in Tabelle 5.2 und Abbildung 5.5 zusammengefasst. Die ermittelten Massen der homogenen Beton- und PE-Probe (Probe HC & HP) stimmen innerhalb der Unsicherheiten mit den erwarteten Werten <sup>72</sup> überein. Die absoluten Abweichungen liegen hierbei lediglich zwischen -2 % und +6 %. Die Ergebnisse für die Beton-Probe (Probe HC) stimmen gut mit denen aus einer vorherigen Arbeit<sup>4</sup> überein und zeigen die gute Reproduzierbarkeit dieser Methode. Für die heterogenen Mischproben liegen die Abweichungen der Quantifizierung zwischen -27 % und +58 % und resultieren vordergründig aus der Simplifizierung des Quantifizierungsmodells. Das Modell berücksichtigt nicht die Effekte der Heterogenität auf die thermische Neutronenflussverteilung in der Probe sowie auf die Detektor-Effizienz.

Die Streuung der Daten ist in Abbildung 5.5 mittels des Box-Whisker-Diagramms aufgezeigt. Der Median und das arithmetische Mittel der Daten liegen bei ungefähr 1,0. In den meisten Fällen wird die Elementmasse von Wasserstoff unterschätzt und Titan überschätzt. Die Daten der weiteren Elemente entsprechen einer Normalverteilung. Die verbleibenden Elemente weisen eine Normalverteilung auf. Nur 18 % aller Daten werden als Ausreißer identifiziert. Der Fit der Daten mittels einer Gauss-Verteilung (Abbildung 5.5) ergibt einen Median von  $\mu = 0,99 \pm 0,08$  und eine Standardabweichung von  $\sigma = 0,168 \pm 0,08$ . Dementsprechend wird eine konservative Unsicherheit von 34 % ( $2\sigma$ ) zur Bestimmung der Elementmassen in heterogenen Proben aus Beton und PE angenommen.

<sup>72</sup> Belgya T. (2012) Prompt gamma activation analysis at the Budapest research reactor. Phys Procedia 31:99–109

**Tabelle 5.2:** Verhältnis zwischen den gemessenen und erwarteten Elementmassen der symmetrischen Proben aus Beton und PE. Für die Elemente Si und Ca wurde der Mittelwert aus den Einzelverhältnissen der jeweiligen  $\gamma$ -Linie ermittelt.

Probenbezeichnung	H	B	Si	K	Ca	Ti
HC	1,01 ± 0,04	1,05 ± 0,05	1,06 ± 0,09	1,01 ± 0,05	1,06 ± 0,09	0,98 ± 0,04
HP	0,99 ± 0,14	-	-	-	-	-
Ra1	1,40 ± 0,19	1,21 ± 0,17	1,13 ± 0,19	1,12 ± 0,15	1,13 ± 0,16	0,93 ± 0,11
Ra2	0,81 ± 0,12	1,11 ± 0,16	1,3 ± 0,2	1,13 ± 0,15	1,26 ± 0,18	1,25 ± 0,15
Ra3	0,95 ± 0,14	0,79 ± 0,12	1,07 ± 0,19	1,01 ± 0,14	1,07 ± 0,15	1,18 ± 0,14
Ra4	1,00 ± 0,15	0,97 ± 0,14	1,2 ± 0,2	0,93 ± 0,13	1,17 ± 0,17	1,58 ± 0,19
Ra5	0,73 ± 0,11	1,06 ± 0,15	1,00 ± 0,18	1,17 ± 0,16	0,99 ± 0,14	0,89 ± 0,11
Ra6	0,91 ± 0,14	0,70 ± 0,14	1,2 ± 0,2	1,33 ± 0,18	1,18 ± 0,17	1,26 ± 0,15
Ax1	0,90 ± 0,13	0,89 ± 0,12	1,07 ± 0,19	0,77 ± 0,10	1,07 ± 0,15	1,16 ± 0,14
Ax2	0,90 ± 0,13	0,86 ± 0,12	1,1 ± 0,2	0,73 ± 0,09	1,11 ± 0,16	1,14 ± 0,14
Ax3	0,89 ± 0,13	0,88 ± 0,13	1,02 ± 0,18	0,96 ± 0,13	1,02 ± 0,15	1,10 ± 0,13
Ax4	0,83 ± 0,12	1,21 ± 0,17	0,91 ± 0,16	0,97 ± 0,13	0,91 ± 0,13	1,23 ± 0,15



**Abbildung 5.5:** Verhältnisse zwischen bestimmten und erwarteten Elementmassen mittels einem Box-Whisker Diagramm<sup>73</sup> sowie mittels einer Gauss-Verteilung. Die durchgehenden und gestrichelten roten Linie innerhalb der Box repräsentieren den Median und den arithmetischen Mittelwert. Die runden ausgefüllten Punkte stellen Ausreißer dar.

<sup>73</sup> **Anmerkung zum Box-Whisker-Diagramm:** Box-Whisker-Diagramme stellen Daten als Box dar, welche statistische Kennzahlen repräsentiert. Die untere Grenze der Box zeigt das 25. Perzentil, eine durchgehende Linie innerhalb der Box markiert den Median und die obere Grenze der Box, am weitesten von Null zeigt das 75. Perzentil. Linien (Whiskers) oberhalb und unterhalb der Box geben das 90. bzw. 10. Perzentil an. Zusätzlich ist das arithmetische Mittel (gestrichelte rote Linie) und Ausreißer-Punkte (geschlossene Punkte) dargestellt.

## 5.2 ASYMMETRISCHE MATRIXANORDNUNG

Es wurden für die asymmetrischen Proben (Proben B und P) die Prompt- $\gamma$ -Linien von  $^1\text{H}$  (2223,2 keV),  $^{10}\text{B}$  (477,6 keV),  $^{28}\text{Si}$  (1273,3, 2092,9, 3538,9 keV) und  $^{40}\text{Ca}$  (1942,7, 4418,5 keV) der Matrizen sowie  $^{56}\text{Fe}$  (691,9 keV) des Stahlfasses berücksichtigt. Das Spektrum des Leeren Stahlfasses wurde für die Korrektur der Zählraten der  $\gamma$ -Linien von Wasserstoff und Bor herangezogen. Die Bestrahlung der asymmetrischen Proben erfolgte nicht statisch sondern rotationsabhängig in 45°-Schritten. Die Messzeit pro Rotationsschritt betrug 1800 s. Die komplette Messzeit für ein asymmetrisch befülltes 200 l Fass dauerte demnach 4,5 Stunden. Die Winkel -90° bzw. 0° entsprechen den Positionen des Probensegments mit dem geringsten Volumenanteil vor dem Neutronengenerator bzw. vor dem Detektor.

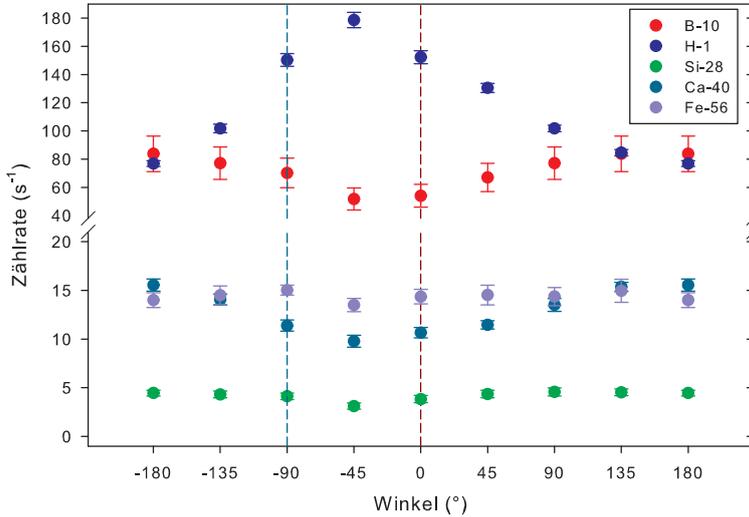
### 5.2.1 PE-SEGMENT IN EINER BETONMATRIX (PROBE B)

Abbildung 5.6 zeigt die Zählrate der herangezogenen  $\gamma$ -Linien als Funktion des Rotationswinkels. Bei der Winkelposition -45° befindet sich das PE-Segment zwischen Neutronengenerator und Detektor. Die Zählrate von  $^1\text{H}$  erreicht bei dieser Position die höchste Zählrate. Gleichwohl erreichen die Zählraten der Isotope des Betons bei dieser Winkelposition ihr lokales Minimum. Grund hierfür ist das Zusammenwirken des spezifischen Produktes aus Nachweiseffizienz mal Neutronenfluss ( $\varepsilon \Phi_{th}$ ). Das PE Segment besitzt an dieser Stelle eine gute Nachweiseffizienz und befindet sich im Bereich des höchsten thermischen Neutronenflusses. Die Zählrate von  $^1\text{H}$   $\gamma$ -Linie an dieser Position ist gegenüber den geringsten Werten (bei 180°) um den Faktor 2,3 höher. Ein Teil des Betons befindet sich unmittelbar vor dem Detektor und besitzt daher eine höhere Nachweiseffizienz, jedoch einen verminderten Neutronenfluss aufgrund des PE-Segments, welches auf die Neutronen stark moderierend und absorbieren wirkt. Im Falle der  $\gamma$ -Linien der Isotope des Betons wirkt sich der reduzierte thermische Neutronenfluss stärker auf die Zählrate aus als die Nachweiseffizienz an dieser Position.

Bewegt sich nun das PE-Segment vor den Detektor (0°) so ist die Zählrate der  $^1\text{H}$   $\gamma$ -Linie gegenüber der vorherigen Position verringert. Die Nachweiseffizienz für die  $\gamma$ -Linie von  $^1\text{H}$  ist an dieser Position zwar höher als zuvor, jedoch werden die Neutronen durch den Betonanteil zwischen Neutronengenerator und PE-Segment im Fass stark abgeschwächt und absorbiert. Die Zählraten der Isotope des Betons steigen im Vergleich zur vorherigen Position leicht an. Dieses Verhalten ist bis zu einer Winkelposition von 180° zu beobachten.

Im Winkelbereich von -180° bis -90° verschiebt sich das PE-Segment von der detektorabgewandten Seite in Richtung des Neutronengenerators und erreicht diesen bei -90°. Die Zunahme der Zählrate der  $^1\text{H}$   $\gamma$ -Linie lässt sich aus dem höheren thermischen Neutronenfluss, aufgrund des starken Moderations- und Absorptionsverhaltens des PE erklären. Die Nachweiseffizienz und der thermische Neutronenfluss erhöhen sich mit zunehmender Winkelposition. Bei diesen Winkelpositionen lässt sich beobachten, dass die Zählraten der Isotope des Betons sich verringern. Trotz der Erhöhung der Nachweiseffizienz

verringert sich die Zählrate aufgrund des geringeren thermischen Neutronenflusses, beeinflusst durch das PE-Segment, welches sich zum Neutronengenerator hin verschiebt. Die Zählraten der  $\gamma$ -Linien von  $^{56}\text{Fe}$  des Stahlfasses bleiben über die verschiedenen Messungen hin konstant.



**Abbildung 5.6:** Zählraten der  $\gamma$ -Linien des Betons und des PEs sowie des Stahlfasses als Funktion des Rotationswinkels für ein asymmetrisches PE-Segment in einer überwiegenden Betonmatrix (Probe B).

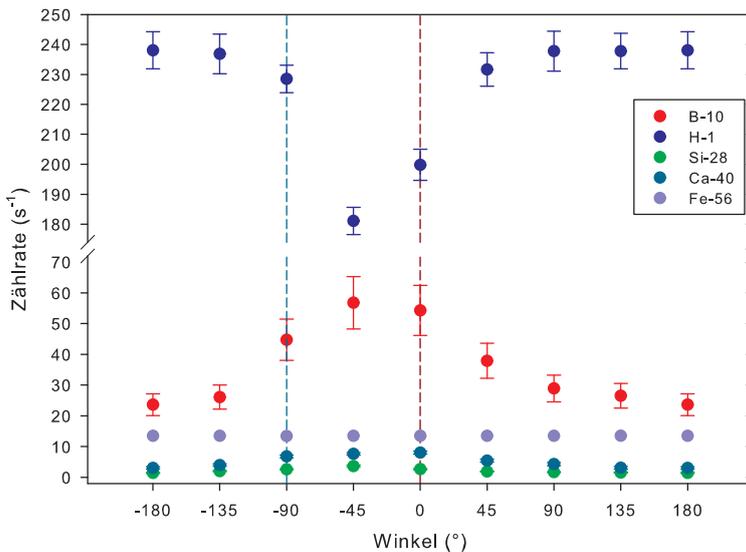
### 5.2.2 BETON-SEGMENT IN EINER PE-MATRIX (PROBE P)

Abbildung 5.7 zeigt die Zählraten der herangezogenen  $\gamma$ -Linien als Funktion des Rotationswinkels. Bei der Winkelposition  $-45^{\circ}$  befindet sich das Beton-Segment zwischen Neutronengenerator und Detektor. Die  $\gamma$ -Linien von Beton erreichen bei dieser Position die höchste Zählrate. Gleichwohl erreicht die Zählrate der  $^1\text{H}$   $\gamma$ -Linie des PEs bei dieser Winkelposition ihr lokales Minimum. Grund hierfür ist das Zusammenspiel des spezifischen Produktes  $\varepsilon \Phi_{th}$ . Das Beton Segment besitzt an dieser Stelle eine gute Nachweiseffizienz und ist an dieser Stelle einem hohen thermischen Neutronenfluss ausgesetzt. Die Zählraten der  $\gamma$ -Linien der Isotope des Betons sind an dieser Position, gegenüber den geringsten Zählraten (bei  $180^{\circ}$ ), um ca. den Faktor 2 höher. Der Wert der Zählrate der  $^1\text{H}$   $\gamma$ -Linie an dieser Position ist gegenüber den höchsten Werten (z. B. bei  $180^{\circ}$ ) um den Faktor 1,3 geringer. Ein Teil des PEs befindet sich unmittelbar vor dem Detektor und besitzt daher eine höhere Nachweiseffizienz, jedoch einen verminderten Neutronenfluss aufgrund des Beton-Segments sowie der übrigen PE-Matrix, welche auf die Neutronen stark moderierend und absorbieren wirken.

Bewegt sich nun das Beton-Segment vor den Detektor ( $0^{\circ}$ ) so ist die Zählrate gegenüber der vorherigen Position minimal geringer. Die Nachweiseffizienz für die  $\gamma$ -Linie der Isotope des Betons sind an dieser Position zwar höher als zuvor, jedoch werden die Neutronen durch die

PE-Matrix zwischen Neutronengenerator und Beton-Segment im Fass stark abgeschwächt und absorbiert. Die höhere Nachweeffizienz kompensiert an dieser Position den geringeren thermischen Neutronenfluss. Die Zählrate der  $^1\text{H}$   $\gamma$ -Linie des PE's steigt im Vergleich zur vorherigen Position leicht an (Faktor 1,1). Dieser Anstieg ist bis zu einer Winkelposition von  $90^\circ$  zu beobachten, wo die Zählrate der  $^1\text{H}$   $\gamma$ -Linie ihre maximalen Werte bei ca.  $240 \text{ c s}^{-1}$  erreicht und diese bis zu einer Winkelposition von  $-135^\circ$  beibehält.

Im Winkelbereich von  $-180^\circ$  bis  $-90^\circ$  verschiebt sich das Beton-Segment von der detektorabgewandten Seite in Richtung des Neutronengenerators und erreicht diesen bei  $-90^\circ$ . Die Zunahme der Zählrate der  $\gamma$ -Linien der Isotope des Betons lassen sich aus dem höheren thermischen Neutronenfluss, aufgrund der Nähe zum Neutronengenerator erklären. Die Nachweeffizienz und der thermische Neutronenfluss erhöhen sich mit zunehmenden Winkel. Bei diesen Winkelpositionen lässt sich beobachten, dass die Zählrate der  $^1\text{H}$   $\gamma$ -Linie des PE's sich verringert. Trotz der hohen Nachweeffizienz des PE's unmittelbar vor dem Detektor verringert sich die Zählrate der  $^1\text{H}$   $\gamma$ -Linie aufgrund des geringeren thermischen Neutronenflusses, beeinflusst durch das Beton-Segment, welches sich zum Neutronengenerator hin verschiebt und aufgrund seiner relativ hohen Dichte die Neutronen hin zum PE absorbiert. Die Zählraten der  $\gamma$ -Linien von  $^{56}\text{Fe}$  des Stahlfasses bleiben auch hier über die verschiedenen Messungen hin konstant.



**Abbildung 5.7:** Zählraten der  $\gamma$ -Linien des Betons und des PE's sowie des Stahlfasses als Funktion des Rotationswinkels für ein asymmetrisches Beton-Segment in einer überwiegenden PE-Matrix (Probe PE).

### 5.2.3 METHODE ZUR QUANTIFIZIERUNG – ASYMMETRISCHE PROBEN

Die Methode der Quantifizierung der beiden asymmetrischen Proben (Probe B und Probe P) erfolgte nach Gleichung 3.4. Aus den acht aufgenommenen prompten  $\gamma$ -Spektren wurden die Zählraten  $^{56}\text{Fe}$  des Stahlfasses ermittelt und hieraus für die Berechnung des thermischen Neutronenflusses das arithmetische Mittel der Zählrate  $\bar{Z}_{E\gamma}$  gebildet. Für Probe B ergibt sich ein thermischer Neutronenfluss von  $(3,3 \pm 1,3) \cdot 10^3 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  und für Probe P  $(3,0 \pm 1,2) \cdot 10^3 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Es ist zu erkennen, dass die thermischen Neutronenflüsse etwa den Neutronenflüssen der symmetrischen Proben (Ergebnisse in Kapitel 5.1.2) entsprechen, welche ein ähnliches Beton/PE-Verhältnis aufweisen. Die Bestimmung der Masse der Elemente H, B, Si und Ca erfolgte nach der gleichen Methode wie zuvor bei den symmetrischen Proben. Die Zählraten der prompten  $\gamma$ -Linien wurden über die acht Messungen gemittelt und anschließend die Stoffmenge  $m$  (Gleichung 3.4), mittels der Effizienz für eine reine Betonmatrix mit der spezifischen scheinbaren Dichte der jeweiligen Probe, bestimmt. Für die Bestimmung von Wasserstoff und Bor wurde eine Untergrundkorrektur der Zählrate aus der Messung des Leeren Stahlfasses vorgenommen.

### 5.2.4 ERGEBNISSE DER QUANTIFIZIERUNG

Die Ergebnisse der Quantifizierung der Proben B und P sind in Tabelle 5.3 zusammengefasst. Die relativen Abweichungen zwischen erwarteten und bestimmten Elementmassen liegen zwischen -26 % und +53 %. Ein Trend in Bezug zur systematischen Abweichung kann nicht identifiziert werden. Die Mittelung der Zählraten der prompten  $\gamma$ -Linien der ausgewählten Elemente stellt ein probates Mittel für eine erste Abschätzung der Elementmassen in asymmetrischen bzw. heterogenen Mischproben dar.

**Tabelle 5.3:** Bestimmte Elementmassen der asymmetrischen Proben B und P mittels gemittelter Zählraten.

Probenbezeichnung	Element/Isotop	$\bar{Z}_{E\gamma}$ ( $\text{s}^{-1}$ )	$m_{\text{Soll}}$ (kg)	$m_{\text{Bestimmt}}$ (kg)	Abweichung
B	H / $^1\text{H}$	123 $\pm$ 23	5,5 $\pm$ 0,1	7,0 $\pm$ 1,9	+27 %
	B / $^{10}\text{B}$	71 $\pm$ 11	15,0 $\pm$ 1,0 <sup>a</sup>	17 $\pm$ 6 <sup>a</sup>	+15 %
	Si / $^{28}\text{Si}$	4,2 $\pm$ 0,7	26,7 $\pm$ 0,5	24 $\pm$ 9	-11 %
	Ca / $^{40}\text{Ca}$	12,8 $\pm$ 2,0	35,8 $\pm$ 0,5	26 $\pm$ 9	-26 %
P	H / $^1\text{H}$	240 $\pm$ 40	12,87 $\pm$ 0,12	13 $\pm$ 4	-2 %
	B / $^{10}\text{B}$	33 $\pm$ 5	3,88 $\pm$ 0,01 <sup>a</sup>	6,0 $\pm$ 2,2 <sup>a</sup>	+53 %
	Si / $^{28}\text{Si}$	2,2 $\pm$ 0,4	7,1 $\pm$ 0,3	8 $\pm$ 3	+11 %
	Ca / $^{40}\text{Ca}$	5,4 $\pm$ 1,2	9,6 $\pm$ 0,3	10 $\pm$ 4	+5 %

<sup>a</sup> Werte für Bor in (g).

## 6 CNAA VON GROßVOLUMIGEN PROBEN

Es wurde mittels der CNAA untersucht, ob kurzlebige Radionuklide (z. B.  $^{16}\text{N}$ ) in den Mischproben (Kapitel 2.2.1) durch die Verwendung der gepulsten 14 MeV Neutronenquelle und der differenzierten Aufnahme von prompten und verzögerten  $\gamma$ -Spektren zwischen den Neutronenpulsen nachgewiesen werden können. Die Betriebsparameter des Neutronengenerators wurden für die Akquisition der prompten und verzögerten  $\gamma$ -Strahlung wie folgt eingestellt: Die Länge der Neutronenpulse betrug 2 ms und die Repetitionsdauer 40 ms. Die prompte  $\gamma$ -Strahlung wurde mit einer Dauer von 18 ms nach den Neutronenpulsen und die verzögerte  $\gamma$ -Strahlung für 20 ms, direkt nach Beendigung der Akquisition der prompten  $\gamma$ -Strahlen, aufgezeichnet. Die Gesamtaufnahmezeit der prompten und verzögerten  $\gamma$ -Spektren der Mischproben betragen 1620 s und 1800 s.

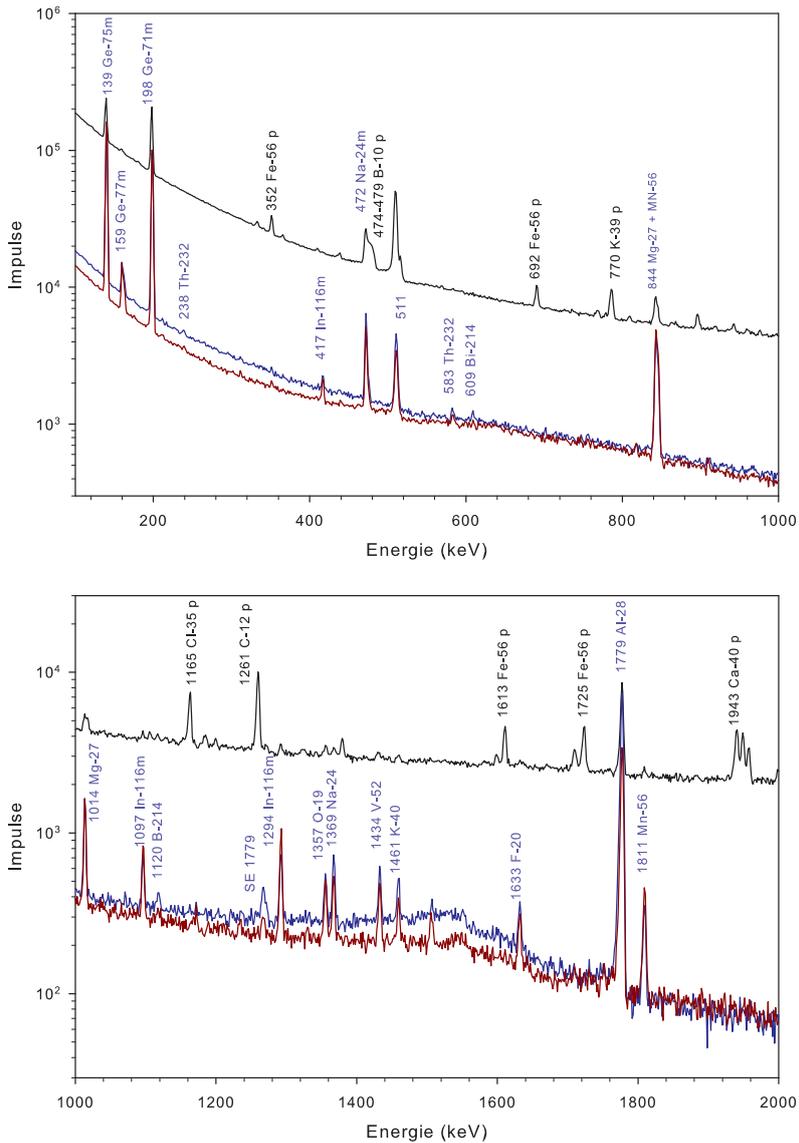
### 6.1 CNAA GROßVOLUMIGER MISCHPROBEN AUS BETON UND PE

Als Beispiel zeigen Abbildung 6.1 und Abbildung 6.2 die prompten und verzögerten  $\gamma$ -Spektren des Stahlfassens gefüllt mit Beton (Probe HC, Tabelle 2.1) und des leeren Stahlfassens für verschiedene Energiebereiche <sup>74</sup>. Die nachgewiesenen  $\gamma$ -Linien sind den entsprechenden Isotopen in den Abbildungen zugeordnet.

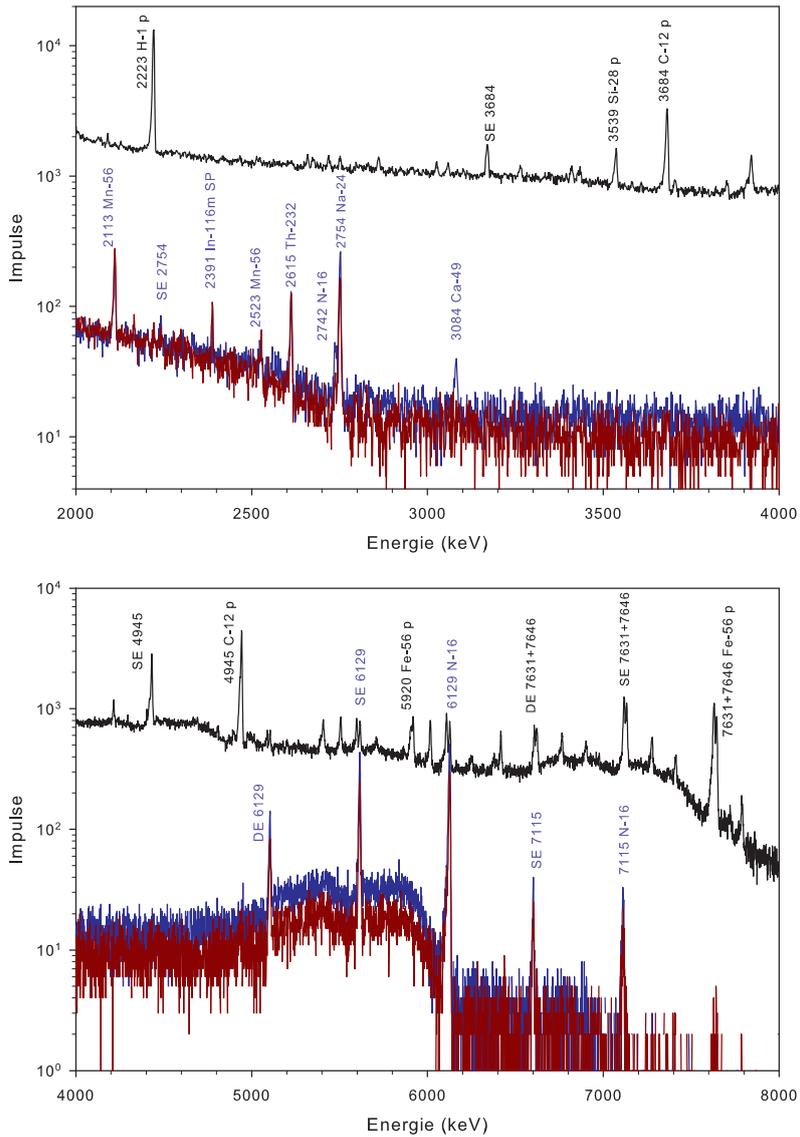
Die Herkunft der beobachteten prompten und verzögerten  $\gamma$ -Strahlung in den aufgezeichneten prompten und verzögerten  $\gamma$ -Spektren des Leeren Stahlfassens und des Fassens gefüllt mit Beton wurden bereits in vorherigen Arbeiten detailliert beschrieben <sup>4 5</sup>.

---

<sup>74</sup> Mildenberger F., Mauerhofer E. (2016) J Radioanal Nucl Chem. Doi: 10.1007/s10967-016-5098-5



**Abbildung 6.1:** Prompt (schwarz) und verzögert (blau)  $\gamma$ -Spektren im Energiebereich 70-2.000 keV für ein 200 l Fass gefüllt mit Beton. Zusätzlich wird das verzögerte  $\gamma$ -Spektrum eines leeren 200 l Stahlfasses gezeigt (rot).



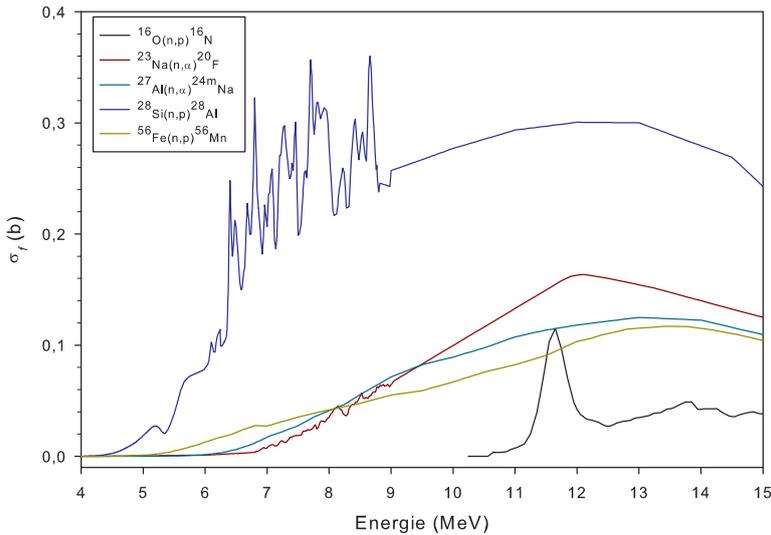
**Abbildung 6.2:** Prompt (schwarz) und verzögert (blau)  $\gamma$ -Spektrn im Energiebereich 2.000-8.000 keV für ein 2001 Fass gefüllt mit Beton. Zusätzlich wird das verzögerte  $\gamma$ -Spektrum eines leeren 2001 Stahlfasses gezeigt (rot).

Die verzögerten  $\gamma$ -Linien von  $^{71m}\text{Ge}$  ( $T_{1/2} = 20,4 \text{ ms}$ ),  $^{75m}\text{Ge}$  ( $T_{1/2} = 47,7 \text{ s}$ ),  $^{24m}\text{Na}$  ( $T_{1/2} = 20,2 \text{ ms}$ ),  $^{16}\text{N}$  ( $T_{1/2} = 7,13 \text{ ms}$ ),  $^{28}\text{Al}$  ( $T_{1/2} = 2,24 \text{ min}$ ),  $^{27}\text{Mg}$  ( $T_{1/2} = 9,46 \text{ min}$ ) und  $^{116m}\text{In}$  ( $T_{1/2} = 53,4 \text{ min}$ ), die bereits in dem prompten  $\gamma$ -Spektralen beobachtet wurden, konnten aufgrund der Abwesenheit prompter  $\gamma$ -Aktivität bzw. des geringeren Compton-Untergrundes, mit einer besseren Messstatistik in den verzögerten  $\gamma$ -Spektralen nachgewiesen werden. Darüber hinaus können die verzögerten  $\gamma$ -Linien der kurz- und mittellebigen Aktivierungsprodukte  $^{19}\text{O}$  ( $T_{1/2} = 26,9 \text{ s}$ ),  $^{20}\text{F}$  ( $T_{1/2} = 11 \text{ s}$ ),  $^{24}\text{Na}$  ( $T_{1/2} = 14,95 \text{ h}$ ),  $^{49}\text{Ca}$  ( $T_{1/2} = 8,72 \text{ min}$ ),  $^{52}\text{V}$  ( $T_{1/2} = 3,74 \text{ min}$ ) und  $^{56}\text{Mn}$  ( $T_{1/2} = 2,56 \text{ h}$ ) eindeutig identifiziert werden <sup>75</sup>.

Das Isotop  $^{19}\text{O}$  wird hauptsächlich durch die (n,p)-Reaktion aus der Wechselwirkung der schnellen Neutronen mit Fluor der  $^6\text{LiF}$  Detektorabschirmung gebildet. Die Bildung dieses Isotops durch thermischen Neutroneneinfang von Sauerstoff in Beton ist wegen der geringen Häufigkeit von  $^{18}\text{O}$  (0,205 %) und aufgrund des geringen Neutronenabsorptionsquerschnitts ( $\sigma_{th} = 1,6 \cdot 10^{-4} \text{ b}$ ) <sup>75</sup> vernachlässigbar. Folglich wird der Sauerstoffgehalt von Beton über die verzögerten  $\gamma$ -Strahlen von  $^{16}\text{N}$ , induziert durch die (n,p)-Reaktion ( $\sigma_f = 0,042 \text{ b}$ ) <sup>31</sup> aus der Wechselwirkung der schnellen Neutronen mit  $^{16}\text{O}$ , bestimmt. Das Isotop  $^{20}\text{F}$  wird durch den epithermischen und schnellen Neutroneneinfang von Fluor in der  $^6\text{LiF}$  Detektorabschirmung sowie durch die  $^{23}\text{Na}(n,\alpha)^{20}\text{F}$ -Reaktion ( $\sigma_f = 0,14 \text{ b}$ ) <sup>31</sup> aus der Wechselwirkung der schnellen Neutronen mit Natrium im Beton der Probe, gebildet. Die Isotope  $^{24}\text{Na}$  und  $^{24m}\text{Na}$  werden hauptsächlich durch (n, $\alpha$ )-Reaktion aus der Wechselwirkung der schnellen Neutronen mit Aluminium in dem Gehäuse des HPGe-Detektors und im Beton der Probe gebildet sowie durch thermischen Neutroneneinfang des Natriums im Beton. Der Wirkungsquerschnitt für die  $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24m}\text{Na}$ -Reaktion beträgt  $\sigma_f = 0,065 \text{ b}$  <sup>75</sup>. Für die  $^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$ -Reaktion betragen die Wirkungsquerschnitte  $\sigma_{th} = 0,40 \text{ b}$  <sup>75</sup> und  $I = 0,312 \text{ b}$  <sup>31</sup>. Das Isotop  $^{49}\text{Ca}$  wird vordergründig durch thermischen Neutroneneinfang,  $^{48}\text{Ca}(n,\gamma)^{49}\text{Ca}$  ( $\sigma_{th} = 1,09 \text{ b}$ ,  $I = 0,485 \text{ b}$ ) <sup>31</sup>, von Kalzium in Beton gebildet. Das Isotop  $^{28}\text{Al}$  wird sowohl durch thermischen und epithermischen Neutroneneinfang durch das Aluminium,  $^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$  ( $\sigma_{th} = 0,230 \text{ b}$ ,  $I = 0,123 \text{ b}$ ) <sup>31</sup>, als auch durch die Reaktion schneller Neutronen mit Silizium,  $^{28}\text{Si}(n,p)^{28}\text{Al}$  ( $\sigma_f = 0,279 \text{ b}$ ) <sup>31</sup>, im Beton gebildet. Das Isotop  $^{52}\text{V}$  wird möglicherweise durch die (n,p)-Reaktion aus der Wechselwirkung der schnellen Neutronen mit Chrom des Stahlgehäuses des Neutronengenerators produziert. Eine weitere mögliche Quelle der Produktion von  $^{52}\text{V}$  könnte der thermische Neutroneneinfang von Spurenelementen von Vanadium in Graphit sein. Das Isotop  $^{56}\text{Mn}$  wird durch  $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ -Reaktion ( $\sigma_{th} = 0,115 \text{ b}$ ) <sup>31</sup> aus der Wechselwirkung der schnellen Neutronen mit dem  $^{56}\text{Fe}$ -Isotop des Stahlfasses gebildet. Abbildung 6.3 zeigt ausgewählte Wirkungsquerschnitte für Reaktionen mit schnellen Neutronen im Energiebereich von 4 bis 15 MeV.

---

<sup>75</sup> Erdmann, G.: *Neutron Activation Tables*, Weinheim, New York, Verlag Chemie, (1976)



**Abbildung 6.3:** Wirkungsquerschnitte <sup>31</sup> der untersuchten Reaktionen mit schnellen Neutronen im Energiebereich von 4 bis 15 MeV.

## 6.2 QUANTIFIZIERUNG DER MISCHPROBEN MITTELS DER CNAA

Die Quantifizierung aus den prompten  $\gamma$ -Linien erfolgt mittels Gleichung 3.5. Die Quantifizierung aus verzögerten  $\gamma$ -Linien durch die Aktivierung mit schnellen und thermischen Neutronen erfolgt nach Gleichung 3.7 bzw. Gleichung 3.10. Aufgrund der unterschiedlichen Neutronendynamik der thermischen Neutronen zwischen Probenmessung und Untergrundmessung (Leeres Fass) sind Kenntnisse über das Abklingverhalten thermischer Neutronen erforderlich, um Korrekturen von interferierender prompter  $\gamma$ -Untergrundstrahlung durchzuführen (vgl. Kapitel 3.2). Des Weiteren ist die Kenntnis um das Abklingverhalten der thermischen Neutronen notwendig, um den thermischen Neutronenfluss während des schnellen Neutronenpulses zu berechnen (Glg. 3.11). Die verwendeten Die-Away Times thermischer Neutronen sind aus Kapitel 4.2 entnommen. Die Korrektur wurde auf die interferierenden Untergrundzählraten der  $\gamma$ -Strahlung von  $^1\text{H}$  (2223,2 keV),  $^{10}\text{B}$  (477,6 keV) und  $^{28}\text{Si}$  (3538,9 keV) des Betons der Probe und von  $^{56}\text{Fe}$  (352,3 keV; 691,9 keV; 7631,5 keV) des Stahlfasses angewandt. Tabelle 6.1 enthält die Die-Away Times thermischer Neutronen für die Korrektur <sup>74</sup>.

**Tabelle 6.1:** Die-Away Times der Isotope  $^1\text{H}$ ,  $^{10}\text{B}$ ,  $^{28}\text{Si}$  der Probe und des mittleren Wertes von  $^{56}\text{Fe}$  des Stahlfasses <sup>74</sup>.

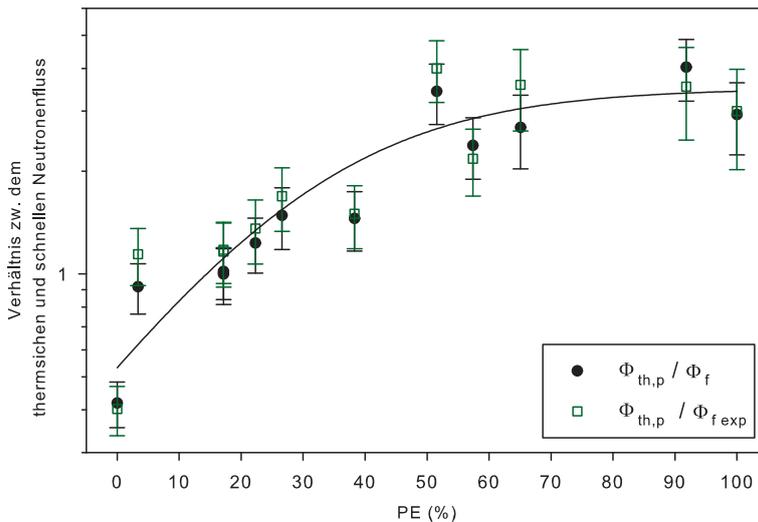
Proben- bezeichnung	$\Lambda_{1\text{H}}$ (ms)	$\Lambda_{10\text{B}}$ (ms)	$\Lambda_{28\text{Si}}$ (ms)	$\bar{\Lambda}_{56\text{Fe}}$ (ms)
Leeres Fass	2,59 ± 0,11	3,56 ± 0,25	2,71 ± 0,01	3,31 ± 0,07
HP	2,32 ± 0,07	2,72 ± 0,19	-	2,42 ± 0,05
HC	2,34 ± 0,05	2,37 ± 0,04	2,00 ± 0,02	2,32 ± 0,01
Ra1	2,25 ± 0,13	2,21 ± 0,01	1,95 ± 0,02	2,37 ± 0,01
Ra2	2,49 ± 0,08	2,12 ± 0,04	2,31 ± 0,03	2,33 ± 0,04
Ra3	2,27 ± 0,09	1,99 ± 0,04	2,05 ± 0,05	2,33 ± 0,05
Ra4	2,41 ± 0,11	2,03 ± 0,07	1,80 ± 0,05	2,24 ± 0,04
Ra5	2,48 ± 0,18	1,97 ± 0,02	2,11 ± 0,03	2,26 ± 0,02
Ra6	2,32 ± 0,17	1,98 ± 0,03	2,11 ± 0,05	2,33 ± 0,02
Ax1	2,29 ± 0,11	1,81 ± 0,07	1,91 ± 0,04	2,36 ± 0,03
Ax2	2,32 ± 0,13	1,90 ± 0,07	1,99 ± 0,04	2,34 ± 0,03
Ax3	2,46 ± 0,10	1,97 ± 0,02	2,14 ± 0,04	2,35 ± 0,03
Ax4	2,26 ± 0,09	1,84 ± 0,07	2,01 ± 0,04	2,36 ± 0,04

Das Stahlfass wird verwendet, um den thermischen  $^{457}\Phi_{th,pr}$  und schnellen Neutronenfluss  $\Phi_f$  innerhalb der Probe zu bestimmen. Die Werte für die Neutronenflüsse sind in Tabelle 6.2 angegeben. Die thermischen Neutronenflüsse nach den Neutronenpulsen  $\Phi_{th,pr}$  wurden aus den Zählraten der prompten  $\gamma$ -Linien von  $^{56}\text{Fe}$  nach Gleichung 3.4 bestimmt. Die thermischen Neutronenflüsse während der Neutronenpulse  $\Phi_{th,p}$  wurden aus  $\Phi_{th,pr}$  durch die Gleichung 3.11, unter Verwendung der Die-Away Time thermischer Neutronen des Stahlfasses ( $\bar{\Lambda}_{56\text{Fe}}$  siehe Tabelle 6.1), berechnet. Der schnelle Neutronenfluss an der Oberfläche des Stahlfasses  $\Phi_{f,d}$  wurde mit Hilfe der 1811 keV  $\gamma$ -Linie von  $^{56}\text{Mn}$ , induziert durch die (n,p)-Reaktion mit schnellen Neutronen mit dem Eisen des Stahlfasses, bestimmt. Der schnelle Neutronenfluss in der Probenmatrix  $\Phi_f$  ist mittels Gleichung 3.9 und der scheinbaren Dichte  $\rho_a$  (siehe Tabelle 2.3) sowie dem makroskopischen Wirkungsquerschnitt  $\Sigma$  (siehe Tabelle 6.2)<sup>31</sup>, welcher auf der bekannten Probenzusammensetzung basiert bzw. dem makroskopischen Wirkungsquerschnitt  $\Sigma_{exp}$ , ermittelt aus der PGNA <sup>74</sup>.

**Tabelle 6.2:**  $\Phi_{th,p}$  und  $\Phi_{th,pr}$  sind die thermischen Neutronenflüsse in der Probe während bzw. nach Beendigung der Neutronenpulse.  $\Phi_{f,d}$  ist der schnelle Neutronenfluss an der Oberfläche des Stahlfasses.  $\Phi_f$  ist der schnelle Neutronenfluss in der Probe, berechnet durch den makroskopischen Wirkungsquerschnitt  $\Sigma$  für 14 MeV der bekannten Probenzusammensetzung.  $\Phi_{f,exp}$  ist der schnelle Neutronenfluss in der Probe, berechnet mittels dem makroskopischen Wirkungsquerschnitt für 14 MeV  $\Sigma_{exp}$ , basierend auf den Ergebnissen der PGNA <sup>74</sup>.

Proben- bezeichnung	$\Sigma$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	$\Phi_{th,p} \cdot 10^{-3}$ ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )	$\Phi_{th,pr} \cdot 10^{-3}$ ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )	$\Phi_{f,d} \cdot 10^{-3}$ ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )	$\Phi_f \cdot 10^{-3}$ ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )	$\Sigma_{exp}$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	$\Phi_{f,exp} \cdot 10^{-3}$ ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )
Leeres Fass	-	1,8 ± 0,3	5,5 ± 0,9	135 ± 6	-	-	-
HP	0,0689	0,9 ± 0,1	3,9 ± 0,6	63 ± 4	1,33 ± 0,08	0,069	1,3 ± 0,4
HC	0,0392	1,4 ± 0,2	6,2 ± 0,9	133 ± 6	14,8 ± 0,7	0,038	15,4 ± 1,2
Ra1	0,0422	1,3 ± 0,2	5,6 ± 0,9	65 ± 3	6,1 ± 0,5	0,046	4,9 ± 0,5
Ra2	0,0464	1,2 ± 0,2	5,3 ± 0,9	58 ± 4	4,3 ± 0,3	0,048	3,9 ± 0,5
Ra3	0,0569	1,1 ± 0,2	4,8 ± 0,9	35 ± 3	1,4 ± 0,1	0,060	1,2 ± 0,2
Ra4	0,0672	1,0 ± 0,2	4,6 ± 0,9	49 ± 3	1,14 ± 0,07	0,065	1,3 ± 0,2
Ra5	0,0578	1,1 ± 0,2	5,0 ± 0,9	54 ± 4	2,1 ± 0,2	0,056	2,3 ± 0,3
Ra6	0,0476	1,1 ± 0,2	4,9 ± 0,9	47 ± 3	3,3 ± 0,3	0,050	2,9 ± 0,3
Ax1	0,0440	1,3 ± 0,2	5,7 ± 0,9	65 ± 5	5,6 ± 0,4	0,046	4,9 ± 0,7
Ax2	0,0440	1,2 ± 0,2	5,3 ± 0,9	62 ± 4	5,3 ± 0,4	0,047	4,5 ± 0,5
Ax3	0,0525	1,1 ± 0,2	4,8 ± 0,9	62 ± 4	3,3 ± 0,2	0,053	3,2 ± 0,3
Ax4	0,0612	1,0 ± 0,2	4,3 ± 0,9	48 ± 3	1,6 ± 0,2	0,066	1,2 ± 0,1

Erwartungsgemäß nimmt der schnelle Neutronenfluss exponentiell mit zunehmendem PE-Gehalt bzw. zunehmender Wasserstoffkonzentration ab. Die Abweichung der Neutronenflüsse zwischen der Probe mit dem niedrigsten PE-Gehalt (Probe HC) und der Probe mit dem höchsten PE-Gehalt (Probe HP) beträgt  $36 \pm 5 \%$ . Diese Abweichung ist höher als dies bei der Studie der Mischabfälle<sup>70</sup> mittels der PGNAA ( $14 \pm 1 \%$ ) der Fall war und resultiert aus den verschiedenen Bestrahlungs- und Messparametern ( $t_p = 2 \text{ ms}$ ,  $T = 40 \text{ ms}$  und  $t_{pr} = 18 \text{ ms}$  in dieser Arbeit,  $t_p = 50 \mu\text{s}$ ,  $T = 1 \text{ ms}$  und  $t_{pr} = 930 \mu\text{s}$  in <sup>70</sup>). Wie in Abbildung 6.4 gezeigt, erhöht sich das Verhältnis zwischen thermischem und schnellem Neutronenfluss asymptotisch mit zunehmendem PE-Gehalt in der Probenmatrix und spiegelt die konkurrierenden Effekte der Moderation schneller Neutronen und Absorption thermischer Neutronen wider <sup>74</sup>.



**Abbildung 6.4:** Verhältnisse zwischen den thermischen und schnellen Neutronenflüssen im Neutronenpuls in Abhängigkeit des PE-Gehalts bzw. der Wasserstoffkonzentration der Probenmatrix <sup>74</sup>.

### 6.3 ERGEBNISSE DER QUANTIFIZIERUNG

Die Ergebnisse der Quantifizierung sind in Tabelle 6.3 aufgezeigt. Die ermittelten Konzentrationen stimmen innerhalb ihrer Unsicherheiten gut mit den Werten der PGNAA <sup>57 72</sup> der massiven Betonprobe (Probe HC)<sup>70</sup> und den der PGNAA von kleinen Betonproben, welche am Budapester Forschungsreaktor durchgeführt wurde, überein. Die gute Übereinstimmung der Werte für Wasserstoff, Bor und Silizium bestätigen die Gültigkeit der Korrekturen durch die Die-Away Time thermischer Neutronen, die für die  $\gamma$ -Interferenzsignale des Untergrundes durchgeführt wurden.

Für Aluminium, Silizium und Kalzium erfolgte die Bestimmung der Konzentrationen mittels verzögerten  $\gamma$ -Linien ihrer Aktivierungsprodukte. Die ermittelten Werte sind in guter Übereinstimmung mit den Werten die aus der Prompt- $\gamma$ -Messungen erhalten worden sind. Im

Fall von Aluminium und Silizium erfolgte die Bestimmung der Konzentrationen überwiegend aus der schnellen Neutronenreaktionen ((n,α) und (n,p)) wobei die interferierenden Beiträge der thermischen Neutronenreaktionen  $^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24\text{m}}\text{Na}$  und  $^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$  mittels Gleichung 3.10 entsprechend berechnet und berücksichtigt wurden. Die Konzentration von Natrium und Aluminium wurden aus der  $^{23}\text{Na}(n,\alpha)^{20}\text{F}$  Reaktion bzw. der Messung der Prompten-γ-Strahlung von Aluminium abgeleitet.

Für den Fall des Stahlfassens gefüllt mit PE (Probe HP) wurde eine Wasserstoffkonzentration von  $13 \pm 2\%$  ermittelt, welche mit dem erwarteten Wert von  $13 \pm 1\%$  innerhalb der Unsicherheiten gut übereinstimmt.

**Tabelle 6.3:** Elementare Zusammensetzung des Beton, die mittels der CNAA (CNAA Massive Probe)<sup>74</sup> ermittelt wurde, verglichen mit den Ergebnisse der vorherigen PGNAA (PGNAA Massive Probe)<sup>70</sup> sowie mit den Ergebnissen die am Forschungsreaktor in Budapest (PGNAA Kleine Probe)<sup>72</sup> ermittelt wurden<sup>74</sup>.

Element/Isotop	$E_\gamma$ (keV)	CNAA (Massive Probe)	PGNAA (Massive Probe)	PGNAA (Kleine Probe)
H/ <sup>1</sup> H	2223,2	1,35 ± 0,27 %	1,24 ± 0,11 %	1,40 ± 0,07 %
B/ <sup>10</sup> B	447,6	92 ± 22 ppm	99 ppm ± 9 ppm	95 ± 2 ppm
O/ <sup>16</sup> O(n,p) <sup>16</sup> N	6128,6	48,5 ± 4,7 %		
	7115,2	48,3 ± 4,8 %		
		48,4 ± 0,1 % <sup>a</sup>	49,3 ± 1,0 % <sup>b</sup>	47,3 ± 2,5 % <sup>b</sup>
Na/ <sup>24</sup> Na	869,2			0,52 ± 0,11 %
Na/ <sup>23</sup> Na(n,α) <sup>20</sup> F	1633,6	0,59 ± 0,09 %		
Al/ <sup>27</sup> Al	7724,0	5,0 ± 1,1 %	5,1 ± 1,1 %	4,9 ± 0,1 %
Al/ <sup>27</sup> Al(n,α) <sup>24m</sup> Na	472,2	4,7 ± 0,9 %		
		4,9 ± 0,2 % <sup>a</sup>		
Si/ <sup>28</sup> Si	1273,3	18,8 ± 4,2 %	18,5 ± 4,0 %	
	2092,9	16,1 ± 3,8 %	17,4 ± 4,3 %	
	3538,9	17,1 ± 4,1 %	17,7 ± 2,8 %	
Si/ <sup>28</sup> Si(n,p) <sup>28</sup> Al	1778,9	22,5 ± 4,8 %		
		17,7 ± 1,3 % <sup>a</sup>	17,9 ± 0,6 % <sup>a</sup>	17,4 ± 0,2 %
K/ <sup>39</sup> K	770,3	1,4 ± 0,3 %	1,23 ± 0,19 %	1,38 ± 0,06 %
Ca/ <sup>40</sup> Ca	1942,7	22,4 ± 3,9 %	21,4 ± 2,2 %	
	2001,3	21,0 ± 4,2 %	23,6 ± 2,6 %	
	2009,8	22,5 ± 4,6 %	23,6 ± 3,1 %	
	4418,5	23,7 ± 4,3 %	21,8 ± 2,8 %	
	6419,6	22,4 ± 4,1 %	22,9 ± 3,5 %	
Ca/ <sup>48</sup> Ca(n,γ) <sup>49</sup> Ca	3084,0	22,1 ± 4,6 %		
		22,3 ± 0,8 % <sup>a</sup>	22,7 ± 1,0 % <sup>a</sup>	23,3 ± 0,6 %
Ti/ <sup>48</sup> Ti	1381,7	0,30 ± 0,07 %	0,25 ± 0,03 %	0,26 ± 0,06 %

<sup>a</sup> Arithmetisches Mittel

<sup>b</sup> Approximierter Wert, basierend auf der Annahme der maximalen Oxidationszustände für alle Elemente.

Für die heterogenen Proben aus Beton und PE sind die Verhältnisse zwischen gemessenen und erwarteten Elementgehalten in Tabelle 6.4 und Tabelle 6.5 angegeben. Bei einigen Proben konnte aufgrund eines geringen Betoninhalts und/oder aufgrund einer ungünstigen Anordnung der Beton- und PE-Blöcke, was u.U. zu einem relativ geringen schnellen Neutronenfluss führte, kein Netto-Signal für die verzögerten γ-Linien ermittelt werden. Die Abweichung zwischen den gemessenen und erwarteten Werten liegt zwischen -31 und 41 %. Dies ist auf die Vereinfachung des Quantifizierungsmodells, bei dem für die Probenmatrix eine Betonmatrix mit zugehöriger scheinbarer Dichte angenommen wurde, zurückzuführen ist. Die Abweichungen sind mit der PGNAA <sup>70</sup> der symmetrischen Proben (-27 bis 58 %) vergleichbar.

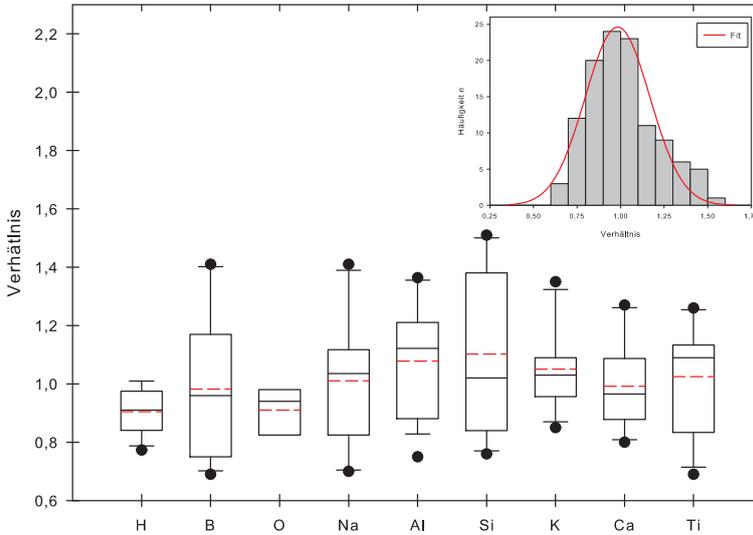
**Tabelle 6.4:** Die Verhältnisse der zu erwarteten Mengen der betrachteten Elemente (H, B, O, Na, Al) der gemessenen symmetrischen Mischproben, bestehend aus Beton und PE. Die Bestimmung erfolgte durch die spezifischen prompten  $\gamma$ -Linien (p) und durch die spezifischen verzögerten  $\gamma$ -Linien (d)<sup>74</sup>.

Probenbezeichnung	H (p)	B (p)	O (d)	Na (d)	Al (p)	Al (d)
Ra1	0,93 ± 0,23	0,75 ± 0,25	0,82 ± 0,08	1,04 ± 0,27	1,01 ± 0,25	1,15 ± 0,09
Ra2	0,86 ± 0,21	0,84 ± 0,21	0,83 ± 0,06	0,97 ± 0,28	1,21 ± 0,26	1,35 ± 0,11
Ra3	0,91 ± 0,20	0,77 ± 0,23	-	-	1,36 ± 0,28	-
Ra4	1,01 ± 0,21	1,09 ± 0,25	-	-	-	-
Ra5	0,82 ± 0,21	1,17 ± 0,23	-	-	-	-
Ra6	0,77 ± 0,22	1,00 ± 0,22	1,12 ± 0,19	1,20 ± 0,28	1,13 ± 0,26	1,29 ± 0,10
Ax1	0,83 ± 0,21	0,69 ± 0,23	0,94 ± 0,07	-	0,88 ± 0,30	0,75 ± 0,08
Ax2	0,85 ± 0,21	0,75 ± 0,20	0,94 ± 0,06	-	1,15 ± 0,27	0,88 ± 0,09
Ax3	0,91 ± 0,22	1,37 ± 0,28	-	-	1,12 ± 0,26	-
Ax4	0,98 ± 0,22	1,41 ± 0,29	-	-	0,88 ± 0,31	-

**Tabelle 6.5:** Die Verhältnisse der zu erwarteten Mengen der betrachteten Elemente (Si, K, Ca, Ti) der gemessenen symmetrischen Mischproben, bestehend aus Beton und PE. Die Bestimmung erfolgte durch die spezifischen prompten  $\gamma$ -Linien (p) und durch die spezifischen verzögerten  $\gamma$ -Linien (d)<sup>74</sup>.

Probenbezeichnung	Si (p)	Si (d)	K (p)	Ca (p)	Ca (d)	Ti (p)
Ra1	0,84 ± 0,04	1,37 ± 0,14	0,95 ± 0,16	0,87 ± 0,07	0,80 ± 0,21	1,09 ± 0,32
Ra2	0,70 ± 0,05	1,50 ± 0,19	1,06 ± 0,17	1,05 ± 0,06	0,94 ± 0,20	1,23 ± 0,35
Ra3	0,82 ± 0,04	-	1,02 ± 0,16	0,98 ± 0,06	-	1,01 ± 0,30
Ra4	0,97 ± 0,04	-	1,03 ± 0,16	1,20 ± 0,08	-	1,09 ± 0,31
Ra5	1,16 ± 0,04	-	1,38 ± 0,21	1,08 ± 0,07	-	1,26 ± 0,36
Ra6	1,02 ± 0,03	1,38 ± 0,14	0,85 ± 0,24	1,11 ± 0,07	0,97 ± 0,22	1,13 ± 0,32
Ax1	0,76 ± 0,05	1,19 ± 0,12	1,03 ± 0,17	0,88 ± 0,07	0,81 ± 0,23	0,87 ± 0,30
Ax2	0,78 ± 0,04	1,44 ± 0,16	0,96 ± 0,16	0,91 ± 0,06	0,84 ± 0,22	0,83 ± 0,30
Ax3	0,99 ± 0,03	1,42 ± 0,14	1,22 ± 0,17	1,27 ± 0,08	0,98 ± 0,22	1,13 ± 0,34
Ax4	0,95 ± 0,03	1,51 ± 0,18	1,09 ± 0,17	1,26 ± 0,08	-	0,69 ± 0,30

Die Streuung der Verhältnisse (Tabelle 6.4 und Tabelle 6.5), inklusive der homogenen Beton- und PE-Probe (Probe HC und HP), sind im Box-and-Whisker-Plot in Abbildung 6.5 aufgezeigt. In den meisten Fällen ist der Gehalt an Wasserstoff und Sauerstoff unterschätzt. Nur 14 % aller Daten werden als Ausreißer identifiziert. Der Fit der Verteilung der Daten mittels einer Gaußfunktion (Abbildung 6.5) ergibt einen Mittelwert von  $\mu = 0,98 \pm 0,01$  und eine Standardabweichung von  $\sigma = 0,19 \pm 0,01$ . Hieraus kann abgeleitet werden, dass die Bestimmung der Elementmassen für symmetrische heterogene Proben, bestehend aus Beton und PE, mit einer konservativen Unsicherheit von 39 % ( $2\sigma$ ) angegeben werden kann. Dieser Wert ist mit dem Wert der PGNAA (34 %) vergleichbar<sup>70</sup>.



**Abbildung 6.5:** Box-Whisker-Plot der Ergebnisse der Quantifizierung homogener und heterogener Mischproben aus Beton und PE mittels der CNAA. Die durchgehenden und gestrichelten Linien innerhalb der Box repräsentieren den Median und den arithmetischen Mittelwert. Die ausgefüllten Punkte stellen Ausreißer dar.

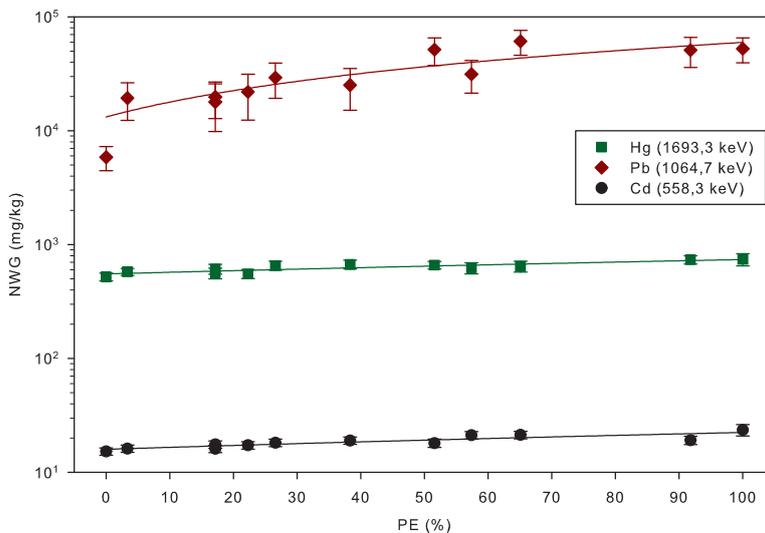
Ein kritischer Punkt liegt in der Bestimmung des Elementgehalts mittels schneller Neutronen. Hierfür ist die Kenntnis des makroskopischen Wirkungsquerschnitts  $\Sigma$  notwendig, um den schnellen Neutronenfluss berechnen zu können. Wie bereits oben erwähnt, wurde der makroskopische Wirkungsquerschnitt auf Basis der bekannten Probenzusammensetzung berechnet. Jedoch erscheint es plausibel, den Wirkungsquerschnitt  $\Sigma_{exp}$  mittels den Ergebnissen der PGNAA zu berechnen und in die Berechnung des schnellen Neutronenflusses einfließen zu lassen. Das Netto-Signal von Sauerstoff korreliert mit einem hohen schnellen Neutronenfluss und lässt hieraus einen hohen Betonanteil in der Probe ableiten (Proben HC, Ra1, Ra2, Ra6, Ax1 und Ax2). Liegt hingegen kein Sauerstoffsignal zu Grunde, wird der PE-Anteil mittels des Prompt- $\gamma$ -Signals von Wasserstoff bestimmt und die Restmasse dem Beton zugeordnet (Proben HP, Ra3, Ra4, Ra5, Ax3 und Ax4). Auf Basis dieser Überlegungen wurde der makroskopische Wirkungsquerschnitt  $\Sigma_{exp}$  (siehe Tabelle 6.2) ermittelt und die daraus resultierenden schnellen Neutronenflüsse  $\Phi_{f,exp}$  bestimmt (siehe Tabelle 6.2). Diese Werte stimmen gut mit den Daten aus der bekannten Probenzusammensetzung überein (siehe Tabelle 6.2). Die Elementquantifizierung, basierend auf dem schnellen Neutronenfluss  $\Phi_{f,exp}$  und dem a priori Wissen über die Probenzusammensetzung, stimmt innerhalb einer Abweichung von  $12 \pm 9\%$  gut mit den erwarteten Werten überein <sup>74</sup>.

Zudem wurden die Nachweisgrenzen ( $3\sigma$  vom Untergrundmesssignal), bezogen auf die Bruttomasse der Probe, für die toxischen Elemente Cadmium, Quecksilber und Blei in der Beton-Probe (Probe HC) berechnet. Die Nachweisgrenzen für Cadmium und Quecksilber wurden mittels Gleichung 3.5, unter Verwendung der prompten  $\gamma$ -Linien bei 558,3 keV ( $\sigma_{E\gamma} =$

1860 b) und 1693,3 keV ( $\sigma_{E\gamma} = 56 b$ ), berechnet. Die Nachweisgrenze für Blei wurde mittels Gleichung 3.7, unter Verwendung der verzögerten  $\gamma$ -Linie von  $^{207m}\text{Pb}$  bei 1063,7 keV ( $T_{1/2} = 805 \text{ ms}$ ), induziert durch die schnellen Neutronenreaktion  $^{208}\text{Pb}(n,2n)^{207m}\text{Pb}$  ( $\sigma_f = 1,63 b$ )<sup>75</sup>, berechnet.

Die Nachweisgrenzen für die Betonprobe sind 14 mg/kg und 520 mg/kg für Cadmium und Quecksilber, jeweils für einen Messzeit von 1620 s sowie 5,5 g/kg für Blei, für eine Messzeit von 1800 s. Die erhaltenen Werte für Cadmium und Quecksilber sind etwa um den Faktor 3,5 höher als die Nachweisgrenzen für eine Messzeit von 1860 s mittels der PGNAA (4 und 145 mg/kg)<sup>57</sup> einer vorherigen Arbeit. Der Grund hierfür liegt in einem geringeren thermischen Neutronenfluss. Die Nachweisgrenzen die erhalten wurden sind vergleichbar mit den Schätzwerten (9 und 115 mg/kg für Cadmium und Quecksilber und 4,4 g/kg für Blei) eines PGNAA-Systems<sup>49</sup> für eine 8-gal. Betonmatrix und für eine Messzeit von 2000 s.

Des Weiteren sind in Abbildung 6.6 die Nachweisgrenzen von Cd, Hg und Pb für das Fass gefüllt mit Beton und die symmetrischen Proben aus Beton und PE aufgetragen. Die Nachweisgrenzen nehmen mit zunehmendem PE-Anteil in der Probe zu. Die Erhöhung der Nachweisgrenzen für Cd und Hg resultiert hauptsächlich aus dem Produkt der Nachweeffizienz<sup>70</sup> und dem thermischen Neutronenfluss (siehe Tabelle 6.2), da die Untergrundzählraten für alle Messungen ungefähr gleich hoch sind. Für den Fall von Blei ergibt sich im Wesentlichen eine Erhöhung der Nachweisgrenze aufgrund der Abnahme des schnellen Neutronenflusses mit zunehmendem PE-Anteil in der Probe (siehe Tabelle 6.2).



**Abbildung 6.6:** Nachweisgrenzen für die symmetrischen Proben aus Beton und PE. (Log-Lin-Darstellung. Die durchgezogenen Hilfslinien dienen der Trenderkennung.)

Diese Studie von 200 l Fässern gefüllt mit Beton und PE mittels der gepulsten 14 MeV Neutronenquelle und der differenzierten Aufnahme von prompten und verzögerten  $\gamma$ -Spektren zwischen den Neutronenpulsen ermöglicht die Detektion von nachzuweisenden, kurzlebigen Radionukliden (z. B.  $^{16}\text{N}$ ) im verzögerten  $\gamma$ -Spektrum. Mittels der Die-Away Time thermischer Neutronen konnten Hintergrundstörungen im prompten  $\gamma$ -Spektrum korrigiert und die thermischen Neutronenflüsse während des Neutronenpulses bestimmt werden. Es konnte gezeigt werden, dass mittels der getroffenen Annahmen in Bezug auf die Probenzusammensetzung die schnellen Neutronenflüsse in der Probe bestimmt werden können. Die vorgestellte Methode zeigt für homogene Proben eine gute Übereinstimmung mit einer Abweichung von  $\pm 12\%$  ( $2\sigma$ ) zwischen erwarteten und gemessenen Werten. Die bestimmten Elementmassen der heterogenen Proben stimmen mit den erwarteten Werte im Bereich von  $\pm 39\%$  ( $2\sigma$ ) über ein. Diese beobachteten Abweichungen werden auf lokale Störungen des schnellen und thermischen Neutronenflusses zurückgeführt, resultierend aus den unterschiedlichen Neutronenmoderations- und Absorptionseigenschaften der Probenzusammensetzungen.

## 7 NACHWEIS EINES LOKAL KONZENTRIERTEN ELEMENTS

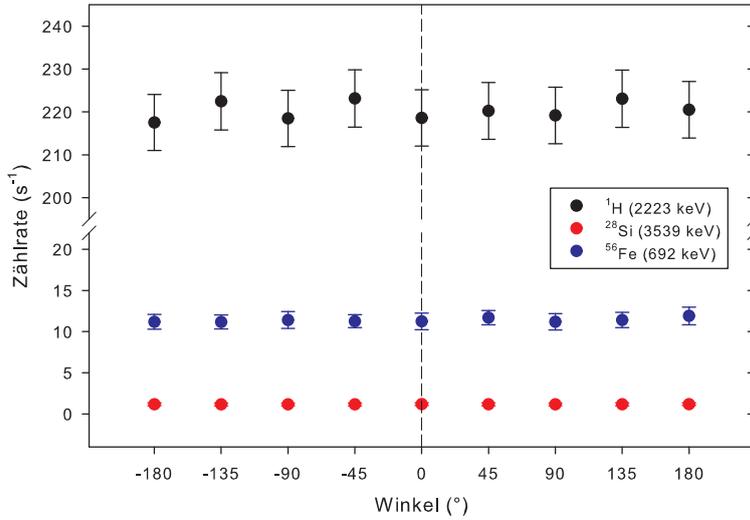
In einer vorherigen Arbeit wurde das Verhalten einer lokal konzentrierten Probe (Cd-Blech) in einer Betonmatrix untersucht und ein Modell zum Nachweis und zur Quantifizierung entwickelt<sup>5</sup>. In dieser Arbeit wird untersucht, wie eine lokal konzentrierte Probe in einer PE-Matrix (Probe HP) sowie in den asymmetrischen Mischmatrizes (Kapitel 5.2) charakterisiert werden kann. Als lokal konzentrierte Probe dient das Cd-Blech (Kapitel 2.2.3). Zudem wurde untersucht, ob die lokal konzentrierte Probe sich auf den thermischen Neutronenfluss und die Quantifizierung der Matrix der asymmetrischen Proben auswirkt. Es wurden für die Bestrahlungen ein Neutronenpuls von 50  $\mu\text{s}$  und eine Repetitionsperiode von 1 ms am Neutronengenerator eingestellt. Die Prompt- $\gamma$ -Strahlung wurde nach einer Wartezeit von 10  $\mu\text{s}$  nach dem Neutronenpuls für den Zeitraum von 940  $\mu\text{s}$  rotationsabhängig in 45°-Schritten aufgenommen. Die Messzeit pro Winkelposition betrug 1800 s. Die komplette Messzeit für eine Probe betrug ca. 4,5 Stunden. Die Charakterisierungen erfolgen anhand der Prompten- $\gamma$ -Linien von  $^1\text{H}$  (2223,2 keV) für PE und durch die repräsentativen Isotope von Beton  $^{10}\text{B}$  (477,6 keV) und  $^{40}\text{Ca}$  (1942,7 keV) sowie mittels der 558,3 keV Prompt- $\gamma$ -Linie des  $^{113}\text{Cd}$ -Isotops. Das Isotop  $^{28}\text{Si}$  (3538,9 keV) ist sowohl im Beton als auch im Untergrund zu finden. Zudem wurde ein numerisches Modell zur Quantifizierung einer lokalen Elementmasse in der Beton- und PE-Matrix entwickelt und validiert. Weiterhin wurde das Modell für die asymmetrischen Mischproben angewandt.

### 7.1 CADMIUMBLECH IN EINER PE-MATRIX

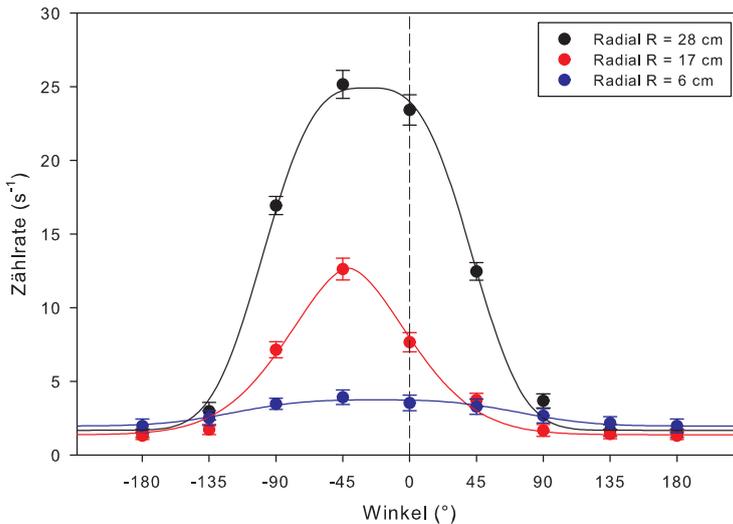
Für diese Studie wurde das 200 l Fass mit einer PE-Matrix gefüllt und ein Cd-Blech in die Probenmatrix (Probe HP - siehe Kapitel 2.2.3) eingebracht. Die Messung der prompten  $\gamma$ -Strahlung erfolgt als Funktion der Fassrotation für ausgewählte Radialabstände des Cd-Blechs vom Fassmittelpunkt (6 cm, 17 cm und 28 cm), um anschließend die Lokalisation der Elementmasse in der Matrix rekonstruieren zu können.

Abbildung 7.1 zeigt die Zählraten der  $\gamma$ -Linien von  $^1\text{H}$  (2223,2 keV) der Probe,  $^{28}\text{Si}$  (3538,9 keV) des Untergrunds und  $^{56}\text{Fe}$  (691,9 keV) des Stahlfasses als Funktion des Rotationswinkels. Die Cd-Probe befindet sich hier bei einem Radialabstand von 28 cm. Die Zählraten der  $\gamma$ -Linien von  $^1\text{H}$ ,  $^{28}\text{Si}$  und  $^{56}\text{Fe}$  bleiben über alle Winkelpositionen hinweg konstant. Das Cd-Blech scheint sich demnach nicht auf den Neutronenfluss der Matrix und des Stahlfasses auszuwirken.

Abbildung 7.2 zeigt die rotationsabhängigen Zählraten der  $^{113}\text{Cd}$  Prompt- $\gamma$ -Linie (558,3 keV) für die Radialabstände 6 cm, 17 cm und 28 cm. Bei 0° bzw. -90° befindet sich das Cd-Blech unmittelbar vor dem Detektor bzw. unmittelbar vor dem Neutronengenerator.



**Abbildung 7.1:** Zählraten der  $\gamma$ -Linien von  $^1\text{H}$  der Probe,  $^{28}\text{Si}$  des Betons und des Untergrunds und  $^{56}\text{Fe}$  des Stahlfasses als Funktion des Rotationswinkels. Die Cd-Probe befindet sich bei einem Radialabstand von 28 cm.



**Abbildung 7.2:** Zählraten der  $^{113}\text{Cd}$  Prompt- $\gamma$ -Linie (558,3 keV) für die Radialabstände 6 cm, 17 cm und 28 cm als Funktion des Rotationswinkels in einem Fass gefüllt mit PE. Bei 0° bzw. -90° befindet sich das Cd-Blech unmittelbar vor dem Detektor bzw. unmittelbar vor dem Neutronengenerator.

Die Zählrate der  $^{113}\text{Cd}$  Prompt- $\gamma$ -Linie erreicht für alle drei Radialabstände bei der Winkelposition von  $-45^\circ$  ihr Maximum. Das Cd-Blech befindet sich an dieser Winkelposition jeweils zwischen dem Detektor und dem Neutronengenerator. Grund für das Zählratenmaximum ist das spezifische Produkt  $\varepsilon \Phi_{th}$ . Die  $\gamma$ -Strahlung des Cd-Blechs besitzt an dieser Stelle eine gute Nachweiseffizienz und ist zudem einem hohen thermischen Neutronenfluss ausgesetzt. Mit zunehmendem Radialabstand des Cd-Blechs in der Matrix nimmt die Streuung der Zählratenverteilung ab. Die Begründung hierfür liegt in der geringeren Absorptionswegstrecke der  $\gamma$ -Strahlung des Cd-Blechs durch die Matrix hin zum Detektor. Die Zählratenverteilungen wurde mittels einer modifizierten Gauss-Funktion analysiert:

$$f(x) = y_0 + a \cdot e^{\left[-0,5 \cdot \left(\frac{|x-x_0|}{b}\right)^c\right]} \quad 7.1$$

Hierbei ist  $y_0$  die Amplitude der Zählratenverteilung und  $x_0$  der Schwerpunkt der Verteilung. Die Streuung der modifizierten Gauss-Funktion wird durch die Parameter  $b$  und  $c$  definiert. Die „Halbe-Auflösung“  $\Delta x_{1/2}$ , respektive der Wert für die Streuung, lässt sich mit folgender Beziehung berechnen:

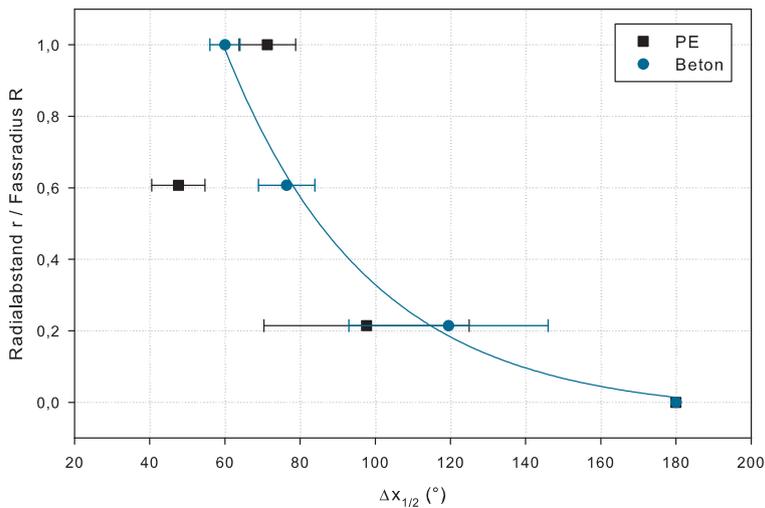
$$\Delta x_{1/2} = b \cdot (2 \cdot \ln(2))^{1/c} \quad 7.2$$

Die Ergebnisse der Fits der Zählratenverteilungen mittels Gleichung 7.1 und die resultierenden Halbe-Auflösung für die untersuchte Radialposition des Cadmium-Blechs sind in Tabelle 7.1 zusammengefasst. In Abbildung 7.3 ist das Verhältnis des Radialabstandes  $r$  zum Fassradius  $R$  als Funktion der Halben-Auflösung für das Cd-Blech in einer Betonmatrix <sup>5</sup> und der PE-Matrix aufgetragen. Die Abbildung zeigt, dass die für die Betonmatrix entwickelte Methode<sup>5</sup> zur Lokalisation (Radialabstand) eines lokal konzentrierten Elements nicht für die PE-Matrix angewandt werden kann. Die Methode gilt nur für Matrizen mit geringen Moderationseigenschaften schneller Neutronen und geringen Absorptionseigenschaften thermische Neutronen.

Vor diesem Hintergrund wurde für die Lokalisierung räumlich konzentrierter Elemente ein Modell entwickelt, welches unabhängig von den Moderations- und Absorptionseigenschaften der Matrix eine eindeutige Lokalisierung, in Form des Radialabstandes und der Winkelposition, liefern kann (siehe Kapitel 7.2).

**Tabelle 7.1:** Ergebnisse der Analysen der Zählraten der Prompt- $\gamma$ -Linie von Cadmium in einer PE-Matrix bei verschiedenen Radialpositionen mittels der modifizierten Gauss-Funktion.

Parameter	Wert	Wert	Wert
	( $r = 28 \text{ cm}$ )	( $r = 17 \text{ cm}$ )	( $r = 6 \text{ cm}$ )
<b>a</b>	$23,2 \pm 0,9$	$11,3 \pm 0,8$	$1,8 \pm 0,2$
<b>b</b>	$64,1 \pm 2,4$	$39,4 \pm 4,1$	$87,5 \pm 9,1$
<b>c</b>	$3,1 \pm 0,4$	$1,7 \pm 0,3$	$2,9 \pm 0,9$
<b><math>x_0</math></b>	$-28,4 \pm 1,6$	$-41,2 \pm 2,7$	$-22,1 \pm 5,4$
<b><math>y_0</math></b>	$1,7 \pm 0,5$	$1,4 \pm 0,4$	$1,9 \pm 0,2$
<b><math>\Delta x_{1/2}</math></b>	$71,3^\circ \pm 15^\circ$	$47,6^\circ \pm 14,2^\circ$	$97,7^\circ \pm 54,6^\circ$
<b>R<sup>2</sup></b>	0,998	0,994	0,971



**Abbildung 7.3:** Beziehung zwischen der Halben-Auflösung und dem Verhältnis zwischen Radialabstand  $r$  einer lokalen Elementmasse und dem Fassradius  $R$  für die Matrizen Beton<sup>5</sup> und PE.

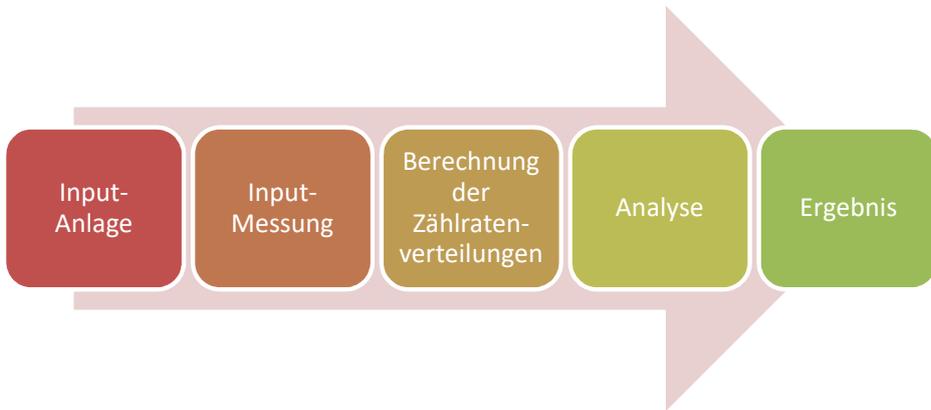
## 7.2 ALGORITHMUS ZUR LOKALISIERUNG RÄUMLICH KONZENTRIERTER ELEMENTE

Auf Basis der Anlagenparameter und der experimentell bestimmten Zählraten kann mittels eines Rekonstruktionsalgorithmus die Radialposition und die Winkelposition des lokal konzentrierten Elements berechnet werden. Das Modell basiert auf einem Algorithmus zur Identifizierung räumlich konzentrierter Radionuklidinventare (Punktquelle) in großvolumigen Abfallfässern mittels dem segmentierten  $\gamma$ -Scan Messverfahrens<sup>76</sup>. Der hier beschriebene Algorithmus berücksichtigt die Neutronenflussverteilung in der Probe, um die Zählratenverteilung berechnen zu können. Die Berechnung der Radialposition und der Winkelposition erfolgten für eine Betonmatrix<sup>5</sup> und die PE-Matrix (Probe HP). Im Anschluss wurde anhand dieser Ergebnisse die Masse des lokal konzentrierten Elements quantifiziert.

<sup>76</sup> T. Krings: SGsreco – Radiologische Charakterisierung von Abfallfässern durch Segmentierte  $\gamma$ -Scan Messungen. D82(Diss., RWTH Aachen University 2014). Hrsg. Und Verlag: Forschungszentrum, Jülich GmbH. ISBN: 978-3-89336-945-4

### 7.2.1 BESCHREIBUNG DES ALGORITHMUS

Der entwickelte Algorithmus verwendet einen inversen Ansatz für die Lokalisation des konzentrierten Elements. Mittels einer  $\chi^2$ -Minimierung werden die experimentell ermittelten Zählratenverteilung mit den berechneten Zählratenverteilungen auf Übereinstimmung hin analysiert und hieraus die Radialposition sowie die Winkelposition bestimmt. Der Algorithmus wurde in C++ geschrieben <sup>77</sup>. Innerhalb des C++ Frameworks wurden die Klassen *iostream*, *cmath*, *fstream*, *sstream*, *vector* und *iomnip* verwendet <sup>77</sup>. Abbildung 7.4 zeigt das Ablaufdiagramm des Modells mit seinen grundlegenden Komponenten bzw. Klassen (Input-Anlage, Input-Messung, Berechnung der Zählratenverteilungen, Analyse und Ergebnis).



**Abbildung 7.4:** Ablaufdiagramm des Algorithmus zur Lokalisation eines lokal konzentrierten Elements.

#### **Klasse: Input-Anlage**

Die Klasse „Input-Anlage“ dient der allgemeinen Bereitstellung von Daten für das Berechnungsmodell und berücksichtigen alle im Vorfeld bekannten Daten und Parameter. Hierzu zählen die geometrischen Daten des standardisierten Abfallfasses (Fasshöhe, Innen- und Außendurchmesser, Material) und des Detektionssystems sowie der Koordinaten des Probenfasses zum Detektorsystem und zum Neutronengenerator. Zudem sind relevante und vordefinierte Massenschwächungskoeffizienten für die  $\gamma$ -Strahlung in Materie<sup>34</sup> sowie mikroskopische Wirkungsquerschnitte für die Wechselwirkung von 14 MeV Neutronen mit Materie<sup>31</sup> in dieser Klasse hinterlegt. Diese Klasse bildet die Datengrundlage für das Modell.

#### **Klasse: Input-Messung**

Die Klasse „Input-Messung“ beinhaltet die experimentell ermittelte Zählratenverteilung der prompten bzw. verzögerter  $\gamma$ -Linie des lokal konzentrierten Elements. Zudem beinhaltet dieser Input die Dichte der Matrix sowie den makroskopischen Absorptionswirkungsquerschnitt für

<sup>77</sup> ISO/IEC. (2017). ISO International Standard ISO/IEC 14882:2014(E) – Programming Language C++. [Working draft]. Geneva, Switzerland: International Organization for Standardization (ISO). Retrieved from <https://isocpp.org/std/the-standard>

14 MeV Neutronen der Probe. Dieser Wirkungsquerschnitt kann beispielsweise aus den a priori Informationen der PGNAA bzw. CNAA ermittelt worden sein (vergleiche  $\Sigma_{exp}$  Kapitel 6.1).

### Klasse: Berechnung der Zählratenverteilungen

Die Klasse „Berechnung der Zählratenverteilungen“ berechnet anhand der beiden Komponenten (Input-Anlage und Input-Messung) die Zählratenverteilungen des lokal konzentrierten Elements. Das schematische Prinzip dieser Berechnung ist in Abbildung 7.5 dargestellt. Die Berechnung der Zählratenverteilung erfolgt anhand einer definierten Verteilung von Punktquellen im Inneren der Probe, unter Berücksichtigung des lokalen Neutronenflusses und der  $\gamma$ -Schwächung durch die Matrix und die Stahlfasswand. Für jede dieser Punktquellen wird eine Trajektorie hin zum Detektor berechnet. Betrachtet man eine einzige Trajektorie  $\vec{q}$  hin zu der Detektoroberfläche, so muss zusätzlich entlang dieser Trajektorie die Absorptionswahrscheinlichkeit in den verschiedenen Materialien (Matrix und Stahlfasswand) der Probe berechnet werden. Das Koordinatensystem, welches der Berechnung aller geometrischen Größen dieses Modells zugrunde liegt, hat seinen Ursprung im Zentrum des Fasses. Die x-Achse ist zum Detektor hingerrichtet. Die Verteilung der Punktquellen wird auf der mittleren Fassebene (auf der Höhe des Detektors und des Neutronengenerator) durch die Zylinderkoordinaten  $(r_p, \varphi_p)$  beschrieben. Es besteht folgende Beziehung für die Position einer Punktquelle  $\vec{r}_{(r_p, \varphi_p)}$ :

$$\vec{r}_{(r_p, \varphi_p)} = \begin{pmatrix} r_p \cdot \cos(\varphi_p + \theta_i) \\ r_p \cdot \sin(\varphi_p + \theta_i) \end{pmatrix} \quad \text{mit} \quad \begin{cases} 0 < r_p \leq 28 \\ 0^\circ \leq \theta_p \leq 360^\circ \end{cases} \quad 7.3$$

Die Schrittweite für den Radius  $r_p$  beträgt 0,56 cm und entspricht damit 50 Schritten. Der Winkel  $\theta_i$  berücksichtigt dabei die Rotation des Fasses (45° Schritte).

Je nach Position der Punktquelle unterliegen die  $\gamma$ -Quanten einer Abschwächung. Der Absorptionsterm für diese Abschwächung  $k_\gamma$  ist wie folgt definiert:

$$k_\gamma = e^{-\frac{\mu}{\rho_M} \cdot \rho_M \cdot l_M} e^{-\frac{\mu}{\rho_{Fass}} \cdot \rho_{Fass} \cdot l_{Fass}} \quad 7.4$$

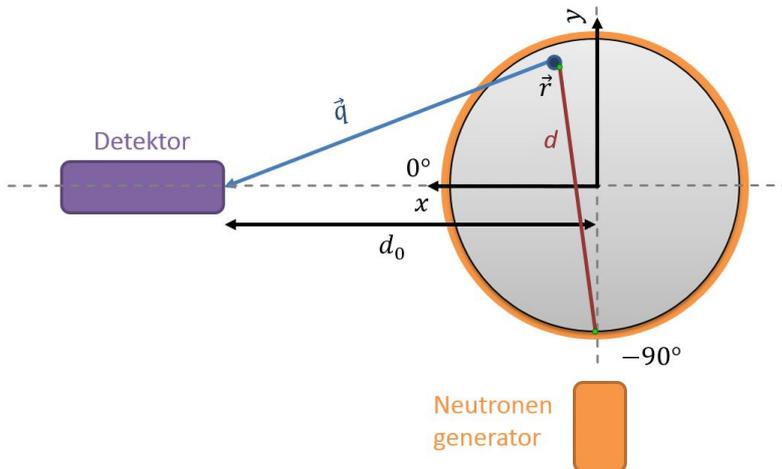
Hierbei ist  $\mu/\rho_M$  und  $\mu/\rho_{Fass}$  ( $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ ) der Massenschwächungskoeffizient der Matrix bzw. des Stahlfasses <sup>34</sup>,  $\rho_M$  und  $\rho_{Fass}$  ( $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) die spezifische Dichte der Matrix bzw. des Stahlfasses und  $l_M$  und  $l_{Fass}$  (cm) die Dicke der zu durchquerenden Matrix bzw. Stahlfasswand.

Der relative lokale Neutronenfluss  $\Phi_{(r_p, \varphi_p)}$  in der Probenmatrix wird ausgehend vom höchsten Wert (unmittelbar vor dem Neutronengenerator) durch folgende Beziehung errechnet:

$$\Phi_{(r_p, \varphi_p)} = e^{-\Sigma_{abs} \cdot d} \quad 7.5$$

Hierbei ist  $\Sigma_{abs}$  der makroskopischen Wirkungsquerschnitt der Matrix für 14 MeV Neutronen und  $d$  die spezifische Wegstrecke in der Matrix, ausgehend von der Fassposition unmittelbar

vom Neutronengenerator ( $-90^\circ$ ). Die Verteilung des lokalen Neutronenflusses wird mit einer Schrittweite von  $d = 0,5 \text{ cm}$  berechnet.



**Abbildung 7.5:** Geometrisches Schema für die Berechnung der Zählratenverteilung anhand von berechneten Punktquellen unter Berücksichtigung des lokalen Neutronenflusses. Hierbei entspricht  $d$  dem Abstand vom Faszmantel vor dem Neutronengenerator zur Punktquelle,  $\vec{q}$  der Trajektorie von der Punktquelle zur Detektoroberfläche und  $d_0$  dem Abstand vom Fassmittelpunkt zur Detektoroberfläche ( $d_0 = 105 \text{ cm}$ ).

### Klasse: Analyse

Die Klasse „Analyse“ untersucht die Übereinstimmung zwischen den berechneten und experimentellen Zählratenverteilungen. Hierfür wurden Komponenten der Daten-Analyse-Software ROOT<sup>78</sup> in das C++ Framework implementiert. Es wurden hierbei die ROOT-Klassen *TCanvas*, *TStyle*, *TGraph*, *TH1*, *TH2*, *TF1*, *TFile* und *TMath* verwendet<sup>78</sup>. Diese Klassen sind relevant für die Analyse von 2D-Objekten sowie für deren Visualisierung und die Analyseanalytik der eingelesenen und berechneten Datenströme. Im ersten Schritt wird geprüft, ob die lokalen Maxima der experimentellen und berechneten Zählratenverteilungen übereinstimmen, so dass die Zählratenverteilungen vollständig überlappen. Ist dies nicht der Fall wird die berechnete Verteilung in einer Schleife iterativ um eine weitere Winkelposition verschoben, bis die Überlappung der experimentellen und berechneten Zählraten eintritt. Der Wert der Verschiebung entspricht dann der Winkelverschiebung des lokalen Maximums. Im zweiten Schritt werden mittels der  $\chi^2$ -Minimierung<sup>78</sup> die Konturen der berechneten Zählratenverteilungen mit der experimentellen Verteilung verglichen und das lokale Minimum der berechneten  $\chi^2$  ausfindig gemacht. Der nähere Bereich dieses Minimums wird mittels einer

<sup>78</sup> René Brun, Fons Rademakers (1997) ROOT – An object oriented data analysis framework, Nuclear Instruments and Methods in Physics, Research A 389 Issues 1-2 Pages 81-86, Doi: 10.1016/S0168-9002(97)00048-X

quadratischen Funktion gefittet. Der Ursprung dieser Parabel entspricht dann dem Radialabstand  $r$  des lokal konzentrierten Elements.

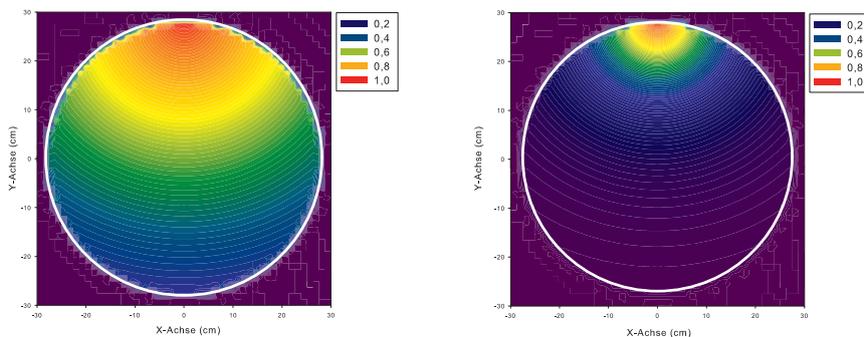
**Klasse: Ergebnis**

Die Klasse „Ergebnis“ gibt die Endergebnisse, den Radialabstand  $r$  (cm) sowie die Winkelposition  $\varphi$  (°) des lokal konzentrierten Elements an.

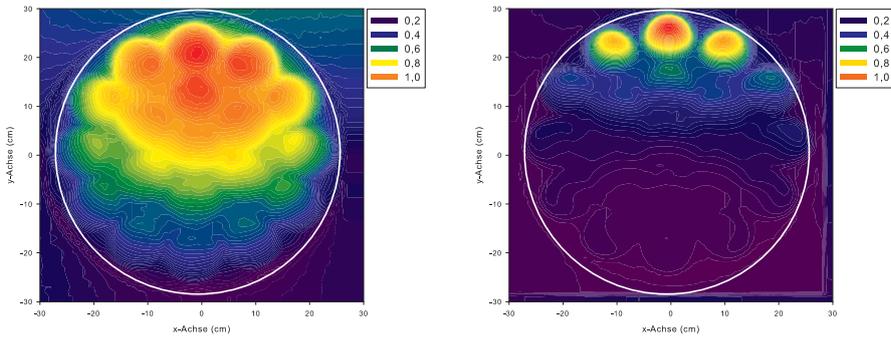
**7.2.2 VALIDIERUNG DES ALGORITHMUS**

Die Validierung des Algorithmus erfolgte anhand der Messungen eines Fass gefüllt mit Beton<sup>5</sup> und dem Fass gefüllt mit PE (Probe HP, Tabelle 2.3) sowie dem Cd-Blech (siehe Kapitel 2.2) an verschiedenen Radialpositionen (6 cm, 17 cm, 28 cm). Es wurden die Zählraten der prompten  $\gamma$ -Linie von Cadmium (558 keV) als Funktion des Rotationswinkels (45°-Schritte) für die Validierung der Lokalisation verwendet.

Für die Berechnungen der Neutronenflussverteilungen wurden die Wirkungsquerschnitte für 14 MeV Neutronen (Betonmatrix:  $\Sigma_{B,14\text{ MeV}} = 0,0392\text{ cm}^{-1}$ ; PE-Matrix:  $\Sigma_{P,14\text{ MeV}} = 0,068\text{ cm}^{-1}$ )<sup>31</sup> der bekannten Probenzusammensetzung sowie die scheinbare Dichte  $\rho_a$  der Proben verwendet. Abbildung 7.6 zeigt die durch das Modell berechneten (Gleichung 7.5) Neutronenfluenzverteilungen für das Fass gefüllt mit Beton<sup>5</sup> und PE. Vergleicht man diese berechneten Werte mit den MCNP-Simulationen (Abbildung 7.7), welche die thermische Neutronenfluenz im Energiebereich 10-100 meV zeigt, so erkennt man die zufriedenstellende Übereinstimmung zwischen dem Berechnungsmodell und der MCNP-Simulation. Das Verhältnis der Integrale der Neutronenfluenzverteilung MCNP zur numerischen Berechnung beträgt für die Betonmatrix 1,4 und für die PE-Matrix 1,2. Diese Abweichung resultiert durch die Berücksichtigung der Rückstreuung der Neutronen durch die Kammerwände in der MCNP-Simulation.

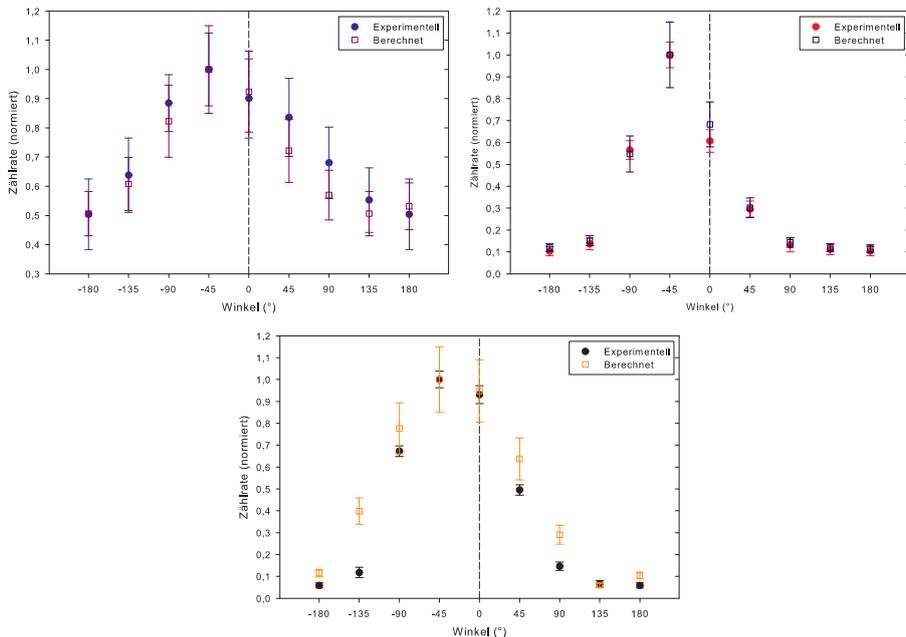


**Abbildung 7.6:** Numerisch berechnete (Gleichung 7.5) relative Neutronenfluenzverteilung für das Fass gefüllt mit Beton<sup>5</sup> (links) und PE (rechts) für 14 MeV Neutronen. Die Schnittebene befindet sich auf der Höhe des Detektors bzw. Neutronengenerators. In dieser Darstellung befindet sich der Neutronengenerator an der Position bei  $x=0\text{ cm}$  und  $y=30\text{ cm}$ .



**Abbildung 7.7:** Mit MCNP simulierte relative Neutronenflussverteilungen im Energiebereich 10-100 meV für das Fass gefüllt mit Beton<sup>5</sup> (links) und PE (rechts). Die Schnittebene befindet sich auf der Höhe des Detektors bzw. Neutronengenerators. In dieser Darstellung befindet sich der Neutronengenerator an der Position bei  $x=0$  cm und  $y=30$  cm.

In Abbildung 7.8 sind die experimentellen und berechneten Zählraten (normiert auf das Zählratenmaximum) als Funktion des Rotationswinkels für die betrachteten Radialabstände (6 cm, 17 cm und 28 cm) des Cd-Blechs in der PE-Matrix (Probe HP) gegenübergestellt. Die Berechneten Zählraten und deren Shapes stimmen mit den experimentellen Zählraten, bis auf einige wenige Ausnahmen (für  $r=28$  cm), innerhalb der Unsicherheiten gut überein.

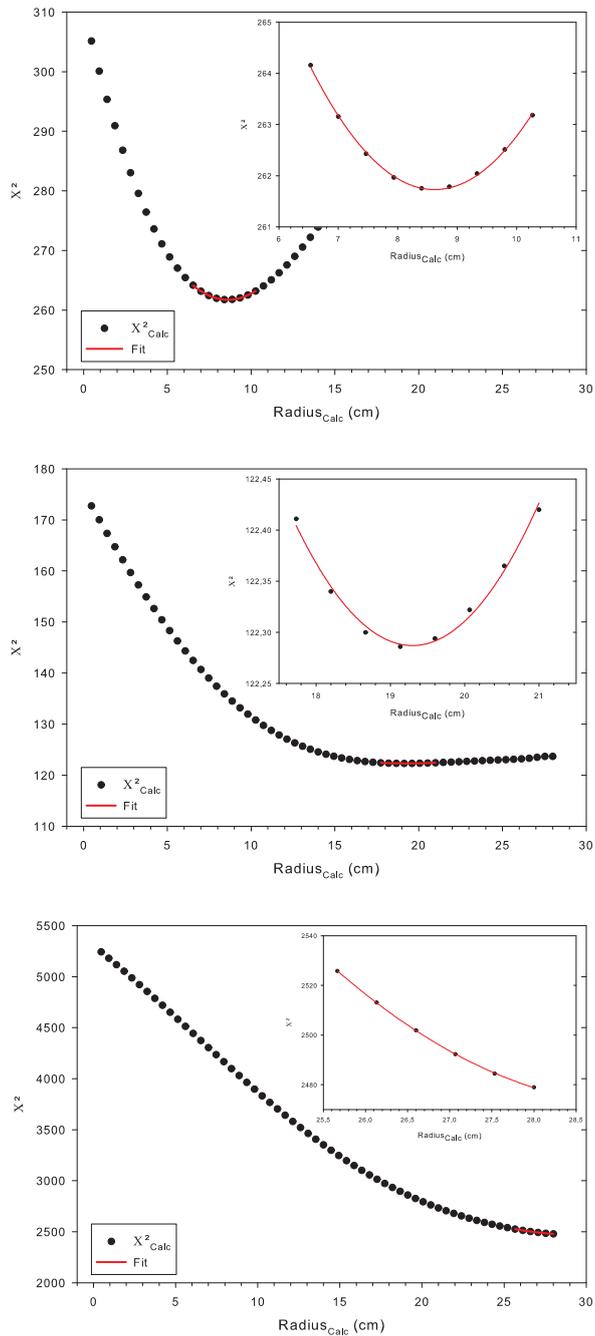


**Abbildung 7.8:** Vergleich der experimentellen und berechneten Zählraten (normiert) als Funktion des Rotationswinkels für das Cadmium-Blech in der PE-Matrix (Probe HP) bei  $R=6$  cm (links), bei  $R=17$  cm (rechts) und bei  $R=28$  cm (unten).

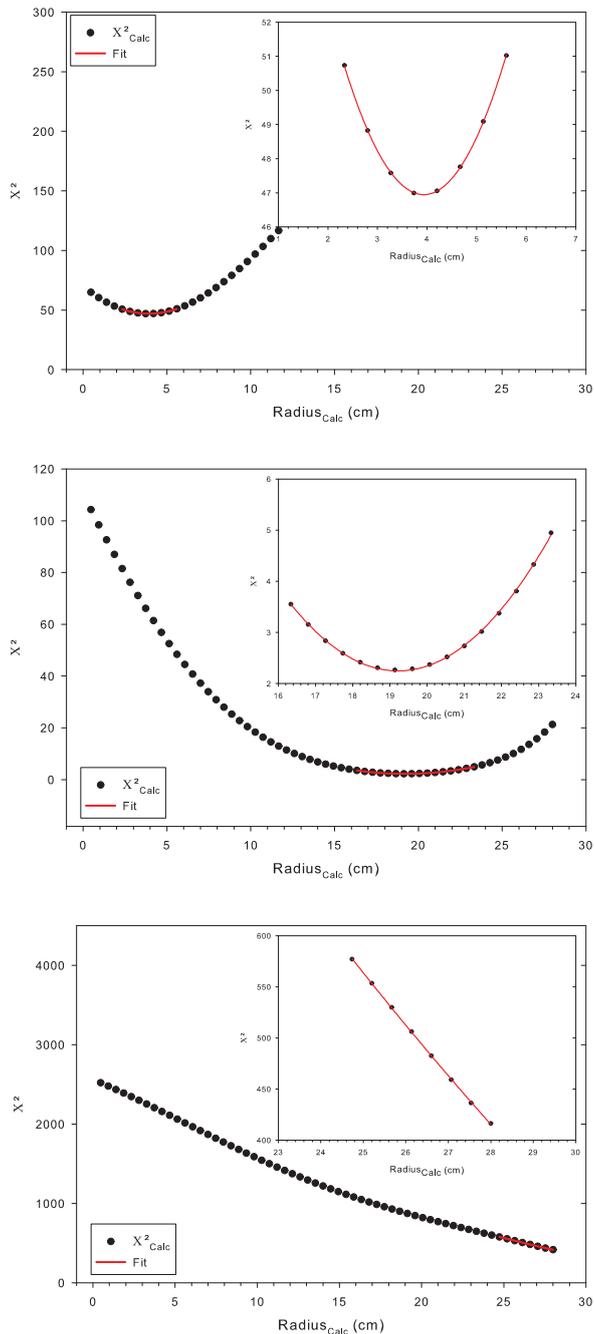
Die Ergebnisse der  $\chi^2$ -Minimierung bzw. die Rekonstruktion des Radialabstandes sowie die Berechnung der realen Winkelposition des lokal konzentrierten Elements sind in Abbildung 7.9 (Fass gefüllt mit Beton<sup>5</sup>) und in Abbildung 7.10 (Fass gefüllt mit PE) dargestellt und in Tabelle 7.2 zusammengefasst. Die Ergebnisse zeigen, dass die größte Abweichung des Modells für den kleinsten Radialabstand (6 cm) des Elements innerhalb der Matrix erfolgt. Die Abweichung beträgt für die Beton-Probe ca. 48 % und für die PE-Probe ca. -33 % und ist durch die flache Zählratenverteilung, resultierende aus dem großen Abstand zum Detektor sowie der starken Absorption der  $\gamma$ -Strahlung der Cd-Linien durch die Matrix sowie durch die vereinfachte Berechnung des Neutronenflusses begründet. Für den Radialabstand von 17 cm ergibt sich für die Beton-Probe eine Abweichung von 12 % und für die PE-Probe eine Abweichung von 13 %. Diese Abweichungen resultieren aus der vereinfachten Modellierung des Neutronenflusses im Inneren der Matrix. Die Rekonstruktion des Radialabstands von 28 cm erfolgt ohne Abweichung. Zudem wurde durch das Modell erkannt, dass das Peak-Maximum für die PE-Probe einer Verschiebung um  $45^\circ$  unterliegt. Diese Verschiebung erfolgt aufgrund der starken Moderations- und Absorptionseigenschaften des PEs für Neutronen. Somit ist sichergestellt, dass die richtige Zählrate für die spätere Quantifizierung der lokalen Elementverteilung verwendet wird.

**Tabelle 7.2:** *Ergebnisse der Rekonstruktion der Radialabstände und der Winkelpositionen.*

Proben- bezeichnung	Cd-Radialposition Beprobung	Cd-Radialposition Rekonstruktion	Abweichung (%)	Verschiebung Peak- Maximum
Beton + Cd-Blech <sup>5</sup>	6 cm	$8,8 \pm 0,8$ cm	47,3 %	$0^\circ$
Beton + Cd-Blech <sup>5</sup>	17 cm	$19,1 \pm 0,5$ cm	12,3 %	$0^\circ$
Beton + Cd-Blech <sup>5</sup>	28 cm	$28,0 \pm 0,1$ cm	0,0 %	$0^\circ$
HP + Cd-Blech	6 cm	$4,0 \pm 0,9$ cm	-33,3 %	$-45^\circ$
HP + Cd-Blech	17 cm	$19,2 \pm 0,5$ cm	13,1 %	$-45^\circ$
HP + Cd-Blech	28 cm	$28,0 \pm 0,1$ cm	0,0 %	$-45^\circ$



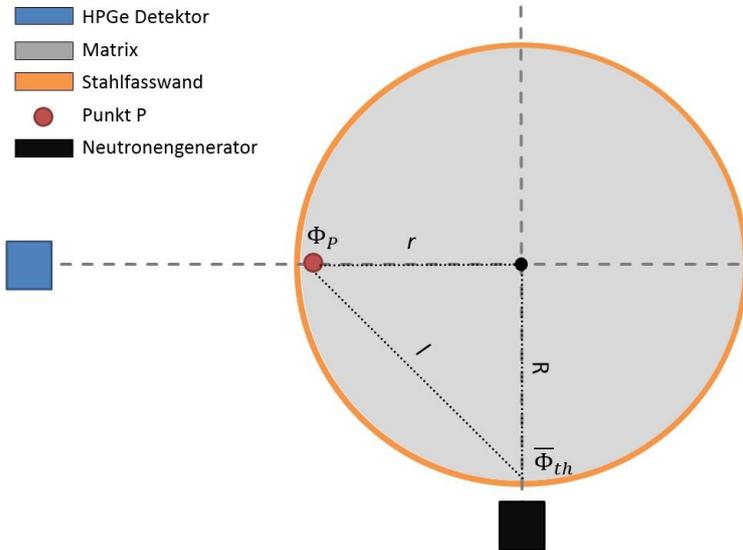
**Abbildung 7.9:** Ergebnisse der  $\chi^2$ -Minimierung der Lokalisation der Cd-Probe in der Betonmatrix<sup>5</sup> bei  $R=6$  cm (oben), bei  $R=17$  cm (mittig) und bei  $R=28$  cm (unten). Der Fit entspricht einer quadratischen Funktion (Zoom).



**Abbildung 7.10:** Ergebnisse der  $\chi^2$ -Minimierung der Lokalisation der Cd-Probe in der PE-Matrix (Probe HP) bei  $R=6$  cm (oben), bei  $R=17$  cm (mittig) und bei  $R=28$  cm (unten). Der Fit entspricht einer quadratischen Funktion (Zoom).

### 7.2.3 QUANTIFIZIERUNG DER ELEMENTMASSE

Nachdem die Lokalisation des Elements positiv erfolgen konnte, wurde seine Masse quantifiziert. Hierfür ist die Berechnung des lokalen thermischen Neutronenflusses erforderlich, welche nach dem Schema in Abbildung 7.11 erfolgt. Die Abbildung zeigt den horizontalen Schnitt durch ein Fass auf der Höhe des Neutronengenerators und des Detektors.



**Abbildung 7.11:** Schematische Darstellung der Berechnung des ortsabhängigen Neutronenflusses im Inneren eines 200 l Stahlfasses. Hierbei ist  $R$  der Fassradius,  $r$  der Radialabstand des Punktes  $P$  vom Fassmittelpunkt aus,  $l$  die Wegstrecke von der Fasswand unmittelbar vor dem Neutronengenerator zum Punkt  $P$ ,  $\Phi_P$  der lokale thermische Neutronenfluss und  $\bar{\Phi}_{th}$  der mittlere thermische Neutronenfluss.

Für den lokalen thermischen Neutronenfluss  $\Phi_P$  an einem Punkt  $P$  gilt:

$$\Phi_P = \bar{\Phi}_{th} \cdot e^{-\Sigma_{Exp} \cdot l} \quad 7.6$$

Hierbei ist  $\bar{\Phi}_{th}$  ( $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) der mittlere thermische Neutronenfluss an der Fassmantelfläche,  $\Sigma_{Exp}$  ( $\text{cm}^{-1}$ ) der makroskopische Wirkungsquerschnitt für 14 MeV Neutronen durch die Matrix und  $l$  (cm) der Abstand vom Fassmantel unmittelbar vor dem Neutronengenerator zum Probenmittelpunkt.

Die Masse des lokal konzentrierten Elements kann nach folgender Gleichung bestimmt werden <sup>5</sup>:

$$m = [Z(E_\gamma) \cdot M] \cdot \left[ N_A \cdot \varepsilon(E_\gamma) \cdot \frac{1 - e^{-(\mu/\rho)_S \rho_S a}}{(\mu/\rho)_S \rho_S a} \cdot e^{-(\mu/\rho)_M \rho_M l_M} \cdot e^{-(\mu/\rho)_F \rho_F w} \right]^{-1} \cdot \left[ \frac{\Phi_p}{a} \left[ \frac{\sigma_{th,E\gamma}}{\Sigma_{th}} + \frac{I(E\gamma)}{\Sigma_{epi}} \cdot e^{-\Sigma_{epi} a} \right] \right]^{-1} \quad \text{mit } \varepsilon_{(E_\gamma)} = \varepsilon_{(E_\gamma),0} \left( \frac{d_0}{d} \right)^2 \quad 7.7$$

Hierbei ist  $Z(E_\gamma)$  ( $s^{-1}$ ) die Zählrate der  $\gamma$ -Linie von Cadmium,  $M$  die molare Masse,  $N_A$  die Avogadro-Zahl,  $(\mu/\rho)_S$  ( $cm^2 \cdot g$ ) der Massenschwächungskoeffizient <sup>34</sup> von Cadmium,  $\rho_S$  ( $g \cdot cm^{-3}$ ) die Dichte von Cadmium,  $a$  (cm) die bekannte Dicke des Cd-Blechs.  $(\mu/\rho)_M$  bzw.  $(\mu/\rho)_F$  ( $cm^2 \cdot g$ ) ist der Massenschwächungskoeffizient <sup>34</sup> der Matrix bzw. des Fasses.  $\rho_M$  bzw.  $\rho_F$  ( $g \cdot cm^{-3}$ ) ist die Dichte der Matrix bzw. des Fasses.  $l_M$  und  $w$  (cm) entsprechen der Wegstrecke der emittierten  $\gamma$ -Strahlen durch die Matrix bzw. durch die Fasswand. Zudem sind  $\sigma_{th,E\gamma}$  ( $cm^2$ ) der partielle Wirkungsquerschnitt <sup>31</sup>,  $I(E\gamma)$  ( $cm^2$ ) das Resonanzintegral <sup>31</sup> sowie  $\Sigma_{th}$  und  $\Sigma_{epi}$  ( $cm^{-1}$ ) die makroskopischen Wirkungsquerschnitte für thermischen und epithermischen <sup>31</sup> Neutroneneinfang.  $\Phi_p$  beschreibt den lokalen thermischen Neutronenfluss an der spezifischen Position des Cd-Blechs im Fass.  $\varepsilon_{(E_\gamma),0}$  ist die Photopeak-Effizienz für  $\gamma$ -Emissionen aus dem Mittelpunkt eines 200 l Fasses und ergibt mittels dem Abstand  $d_0$  (Fassmittenpunkt hin zum Detektor) sowie dem Abstand  $d$  (Probe zum Detektor) die Photopeak-Effizienz  $\varepsilon_{(E_\gamma)}$ .

Die Ergebnisse der Quantifizierung von Cadmium im Fass gefüllt mit Beton<sup>5</sup> bzw. mit PE sind für die betrachteten Radialabstände in Tabelle 7.3 zusammengefasst. Es wurden für die Quantifizierung die Zählraten der  $\gamma$ -Linien des Cadmiums unmittelbar vor dem Detektor (Position 0°) verwendet. Der mittlere thermischen Neutronenfluss für das Fass gefüllt mit PE mit dem Cd-Blech wurde anhand der Vorgehensweise aus Kapitel 5.1.1 berechnet. Die lokalen thermischen Neutronenflüsse wurden anhand von Gleichung 7.6 berechnet.

**Tabelle 7.3:** Ergebnisse der Quantifizierung des Cd-Blechs (135,2 g) in der Beton-Probe<sup>5</sup> und der PE-Probe für verschiedene Radialabstände.

Probenbezeichnung	$\Phi_{th} \cdot 10^{-3}$ ( $cm^2 \cdot s^{-1}$ )	Radialposition Referenz (cm)	$\Phi_p \cdot 10^{-3}$ ( $cm^2 \cdot s^{-1}$ )	Radialposition Rekonstruktion (cm)	Masse Bestimmt (g)	Abweichung
Fass mit Beton <sup>5</sup>	3,4 ± 0,3	6	1,2 ± 0,3	8,8 ± 0,8	115 ± 29	-25 %
	3,4 ± 0,3	17	1,0 ± 0,2	19,9 ± 0,5	97 ± 21	-38 %
	3,4 ± 0,3	28	0,8 ± 0,2	28,0 ± 0,1	170 ± 40	+26 %
Fass mit PE (HP)	3,1 ± 0,3	6	0,43 ± 0,18	4,0 ± 0,9	118 ± 34	-13 %
	3,1 ± 0,3	17	0,32 ± 0,15	19,2 ± 0,5	119 ± 36	-12 %
	3,1 ± 0,3	28	0,23 ± 0,10	28,0 ± 0,1	200 ± 40	+47 %

Für den Radialabstand von 28 cm wird die Elementmasse bei beiden Matrizes überschätzt. Dies ist möglicherweise durch die Wechselwirkung (Reflektion) der schnellen Neutronen zwischen der Graphitwand, dem Fass und der Probe am Fassmantel verursacht. Die Elementmasse wird für die Radialpositionen 6 cm und 17 cm für beide Matrizes unterschätzt. Die

Wechselwirkungen der schnellen Neutronen mit der Graphitwand wirken sich auf diese beiden Radialpositionen weniger stark aus. Gleichwohl sorgen die Abweichungen der rekonstruierten Radialpositionen und das vereinfachte Modell zur lokalen Neutronenflussbestimmung für Abweichungen bei der Quantifizierung der Elementmasse.

### 7.3 ASYMMETRISCHE PROBEN MIT EINEM CD-BLECH

Es wurde das lokal konzentrierte Element (Cd-Blech) in asymmetrischen Proben (Kapitel 2.2.3), anhand von rotationsabhängigen Zählratenverteilungen, untersucht. Das Cd-Blech befindet sich jeweils bei einem Radialabstand von 16 cm und einer Höhe von 43 cm.

#### 7.3.1 CHARAKTERISIERUNG ASYMMETRISCHER PROBEN MIT EINEM CD-BLECH

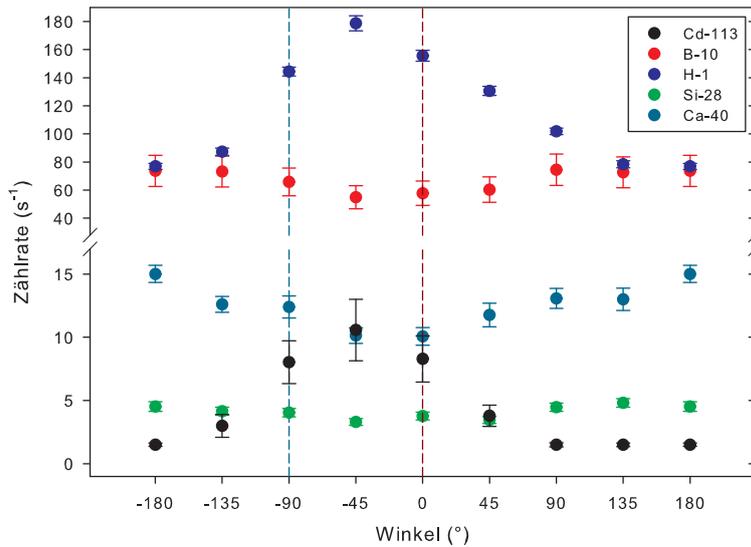
Bei der Probe B-Cd-1 befindet sich das Cd-Blech im PE-Segment und bei der Probe B-Cd-2 in der überwiegenden Betonmatrix. Die Ergebnisse der rotationsabhängigen Zählratenverteilung sind in Abbildung 7.12 (Probe B-Cd-1) bzw. Abbildung 7.13 (Probe B-Cd-2) dargestellt.

Bei der Probe PE-Cd-1 befindet sich das Cd-Blech in der überwiegenden PE-Matrix und bei der Probe PE-Cd-2 im Beton-Segment. Die Ergebnisse der rotationsabhängigen Zählratenverteilung sind in Abbildung 7.14 (Probe PE-Cd-1) bzw. Abbildung 7.15 (Probe PE-Cd-2) dargestellt.

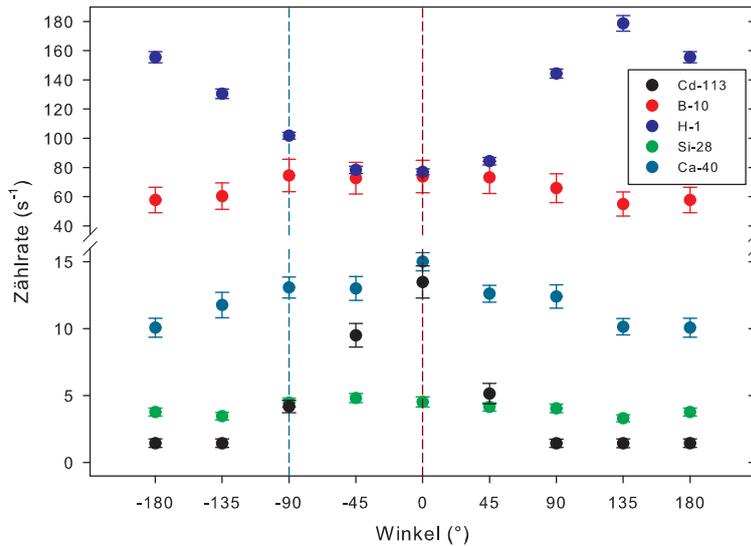
Das Zählratenverhalten der  $\gamma$ -Linien der Isotope ( $^{10}\text{B}$ ,  $^{28}\text{Si}$  und  $^{40}\text{Ca}$ ) des Betons und  $^1\text{H}$  des PEs entsprechen dem Verhalten, welches bei der Probe B und Probe P (Probe ohne Cd-Blech, Kapitel 5.2.1) beobachtet werden konnte und somit die Reproduzierbarkeit des Verfahrens nachweist.

Mittels der Korrelation der Zählrate der  $\gamma$ -Linie von Cd und der Zählraten der Isotope des Betons bzw. des PEs kann die Lokalisation des Cd-Blechs im inneren des Fasses und die Identifizierung seiner lokalen Trägermatrix qualitativ ermittelt werden.

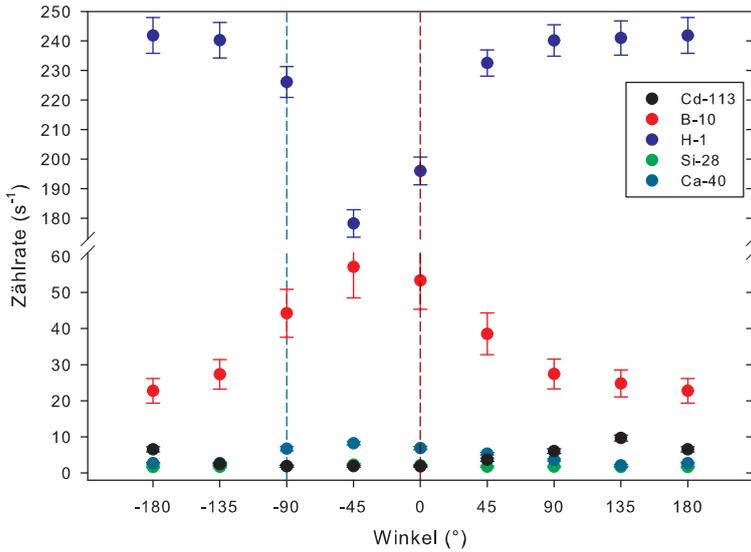
Zur besseren Visualisierung wurde für die nachfolgenden Abbildungen folgende Kennzeichnung festgelegt: Die vertikale türkisfarbene gestrichelte Linie stellt die Position ( $-90^\circ$ ) vor dem Neutronengenerator dar. Die vertikale dunkelrot gestrichelte Linie stellt die Position unmittelbar vor dem Detektor ( $0^\circ$ ) dar.



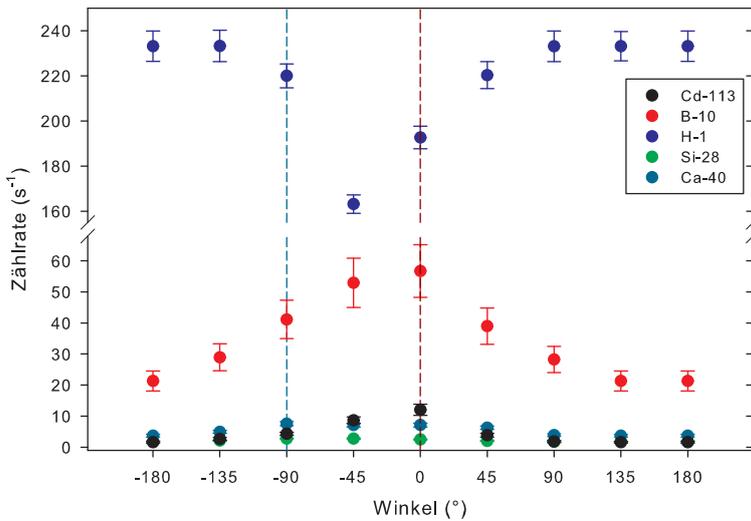
**Abbildung 7.12:** Zählraten der  $\gamma$ -Linien der Isotope des Betons, des PE's und des Cadmiums als Funktion des Rotationswinkels für ein asymmetrisches PE-Segment in einer überwiegenden Betonmatrix (Probe B-Cd-1). Das Cd-Blech befindet sich in dem PE-Segment.



**Abbildung 7.13:** Zählraten der  $\gamma$ -Linien der Isotope des Betons, des PE's und des Cadmiums als Funktion des Rotationswinkels für ein asymmetrisches PE-Segment in einer überwiegenden Betonmatrix (Probe B-Cd-2). Das Cd-Blech befindet sich in der Betonmatrix.



**Abbildung 7.14:** Zählraten der  $\gamma$ -Linien der Isotope des Betons, des PEs und des Cadmiums als Funktion des Rotationswinkels für ein asymmetrisches Beton-Segment in einer überwiegenden PE-Matrix (Probe PE-Cd-1). Das Cd-Blech befindet sich in der PE-Matrix.



**Abbildung 7.15:** Zählraten der  $\gamma$ -Linien der Isotope des Betons, des PEs und des Cadmiums als Funktion des Rotationswinkels für ein asymmetrisches Beton-Segment in einer überwiegenden PE-Matrix (Probe PE-Cd-2). Das Cd-Blech befindet sich in dem Beton-Segment.

### 7.3.2 ERGEBNISSE DER QUANTIFIZIERUNG

Die Bestimmung des thermischen Neutronenflusses sowie die Quantifizierung der Elementmassen der Matrix der asymmetrischen Proben erfolgen nach der in Kapitel 5.2.4 vorgestellten Methode. Diese Ergebnisse sind in Tabelle 7.4 zusammengefasst. Die Werte für die thermischen Neutronenflüsse der asymmetrischen Proben sind identisch zu den Werten der asymmetrischen Proben ohne Cd-Blech (Kapitel 5.2.4). Ein signifikanter Einfluss des Cd-Blechs auf die Bestimmung des thermischen Neutronenflusses kann hier ebenfalls nicht identifiziert werden. Die relativen Abweichungen zwischen erwarteten und bestimmten Elementmassen liegen zwischen -25 % und +31 %. Ein Trend in Bezug zur systematischen Abweichung kann nicht identifiziert werden.

**Tabelle 7.4:** Ergebnisse der Quantifizierung der asymmetrischen Proben mittels gemittelter Zählraten der  $\gamma$ -Linien der betrachteten Isotope.

Probenbezeichnung	$\bar{\Phi}_{th} \cdot 10^3$ ( $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ )	Element/Isotop	$\bar{Z}_{Ey}$ ( $\text{s}^{-1}$ )	$m_{Soll}$ (kg)	$m_{Bestimmt}$ (kg)	Abweichung
B-Cd-1	3,3 ± 1,2	H / $^1\text{H}$	105 ± 22	5,5 ± 0,1	6,1 ± 1,9	+11 %
		B / $^{10}\text{B}$	57 ± 8	15 ± 1 *	14 ± 5 *	-5 %
		Si / $^{28}\text{Si}$	4,0 ± 0,7	26,7 ± 0,5	22 ± 8	-18 %
		Ca / $^{40}\text{Ca}$	13 ± 3	35,8 ± 0,5	28 ± 10	-25 %
B-Cd-2	3,3 ± 1,2	H / $^1\text{H}$	110 ± 23	5,5 ± 0,1	6,4 ± 2,0	+16 %
		B / $^{10}\text{B}$	65 ± 6	15 ± 1 *	16 ± 5 *	+7 %
		Si / $^{28}\text{Si}$	4 ± 1	26,7 ± 0,5	22 ± 8	-18 %
		Ca / $^{40}\text{Ca}$	14 ± 3	35,8 ± 0,5	30 ± 9	-13 %
PE-Cd-1	3,1 ± 1,2	H / $^1\text{H}$	200 ± 30	12,87 ± 0,12	11 ± 4	-17 %
		B / $^{10}\text{B}$	19 ± 4	3,88 ± 0,01 *	4,2 ± 1,7 *	+8 %
		Si / $^{28}\text{Si}$	2,1 ± 0,3	7,1 ± 0,3	8 ± 4	+14 %
		Ca / $^{40}\text{Ca}$	4,7 ± 0,9	9,6 ± 0,3	9 ± 4	-8 %
PE-Cd-2	3,1 ± 1,2	H / $^1\text{H}$	210 ± 30	12,87 ± 0,12	10 ± 3	-20 %
		B / $^{10}\text{B}$	26 ± 5	3,88 ± 0,01 *	5,1 ± 1,9 *	+31 %
		Si / $^{28}\text{Si}$	2,4 ± 0,4	7,1 ± 0,3	9 ± 4	+21 %
		Ca / $^{40}\text{Ca}$	4,3 ± 0,8	9,6 ± 0,3	8 ± 4	-16 %

\* Masse von Bor in (g). Hauptmatrix: B (Beton); P (PE). Probe: Cd-1 (Cd-Blech in PE); Cd-2 (Cd-Blech in Beton)

Um die Quantifizierung der Cd-Masse in den asymmetrischen Proben vornehmen zu können, wurden auf Basis der Quantifizierung der Elementmassen der Matrix (Tabelle 7.4), die makroskopischen Wirkungsquerschnitte  $\Sigma_{Exp}$  ( $\text{cm}^{-1}$ ) für 14 MeV Neutronen <sup>31</sup> (Tabelle 7.5) berechnet. Es wurde hierbei die Annahme getroffen, dass der Wasserstoffgehalt vollständig dem PE zuzuordnen ist. Die verbleibende Masse wurde dem Beton zugeordnet. Hieraus wurden Anteilig die makroskopischen Wirkungsquerschnitte für jede Probe errechnet. Diese Werte werden mit der scheinbaren Dichte der jeweiligen Probe und dem Massenschwächungskoeffizienten<sup>34</sup> für Beton in das Modell zur Rekonstruktion des Radialabstandes und der Winkelposition des Cd-Blechs eingespeist. Für die Quantifizierung wird mittels Gleichung 7.6 und den Werten aus Tabelle 7.4 der lokale thermische Neutronenfluss an der Position des Cd-Blechs bestimmt. Die Quantifizierung erfolgt anhand

von Gleichung 7.7. Die Ergebnisse der Rekonstruktion ( $\chi^2$ -Minimierung) sind in Abbildung 7.16 (Proben B-Cd-1 und B-Cd-2) und Abbildung 7.17 (Proben PE-Cd-1 und PE-Cd-2) dargestellt. Die Ergebnisse der Quantifizierung sind in Tabelle 7.5 bzw. in Tabelle 7.6 zusammengefasst. Die Abweichungen der Rekonstruktion des Radialabstandes des Cd-Blechs für die Proben B-Cd-1 und B-Cd-2 liegen zwischen -2 % und 12 %. Jedoch wird die Winkelposition für die Probe B-Cd-2 unkorrekt mit  $-45^\circ$  (korrekt:  $0^\circ$ ) angegeben. Die Abweichung der Rekonstruktion des Radialabstandes des Cd-Blechs für die Proben PE-Cd-1 und PE-Cd-2 liegt hingegen deutlich höher, bei -47 % und -42 %. Für die Probe PE-Cd-1 wird zudem eine falsche Winkelposition von  $-45^\circ$  angegeben (korrekt:  $0^\circ$ ). Aufgrund der Fehlerpropagation liegen die Abweichungen für die Quantifizierung der Cd-Masse zwischen 48 % und 120 % und werden damit systematisch überschätzt. Bis auf die Probe PE-Cd-1 liegen die Abweichungen noch innerhalb der Unsicherheiten. Die Überschätzungen sind sowohl auf die fehlerhafte Winkelposition als auch auf das vereinfachte Modell zur lokalen Neutronenflussbestimmung, aufgrund der vereinfachten Berechnung des makroskopischen Wirkungsquerschnitts der Matrix, zurückzuführen.

**Tabelle 7.5:** Ergebnisse der Rekonstruktion des Radialabstandes (17 cm) und der Winkelposition des Cd-Blechs in asymmetrischen Proben aus Beton und PE. Die fehlerhaft ermittelten Winkelpositionen sind rot markiert.

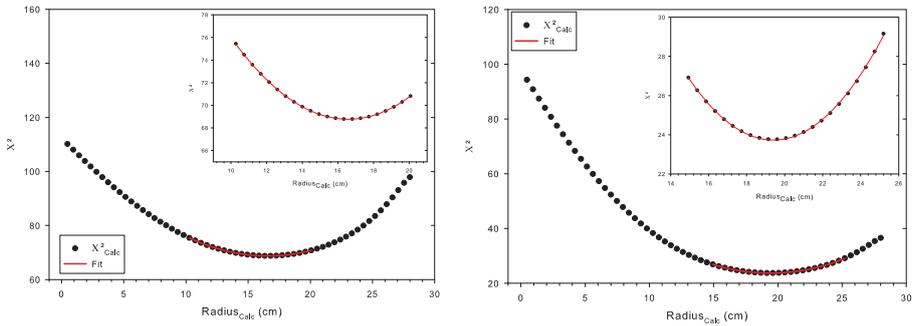
Probenbezeichnung	$\Sigma_{Exp}$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	Radialposition Rekonstruktion (cm)	Abweichung Radialposition	Verschiebung Winkelposition
B-Cd-1	$0,048 \pm 0,007$	$16,6 \pm 2,5$	-2 %	$-45^\circ$
B-Cd-2	$0,047 \pm 0,007$	$19 \pm 3$	+12 %	$-45^\circ$
PE-Cd-1	$0,055 \pm 0,008$	$9,0 \pm 1,4$	-47 %	$-45^\circ$
PE-Cd-2	$0,057 \pm 0,008$	$9,8 \pm 1,7$	-42 %	$-45^\circ$

Hauptmatrix: B (Beton); P (PE). Probe: Cd-1 (Cd-Blech in PE); Cd-2 (Cd-Blech in Beton)

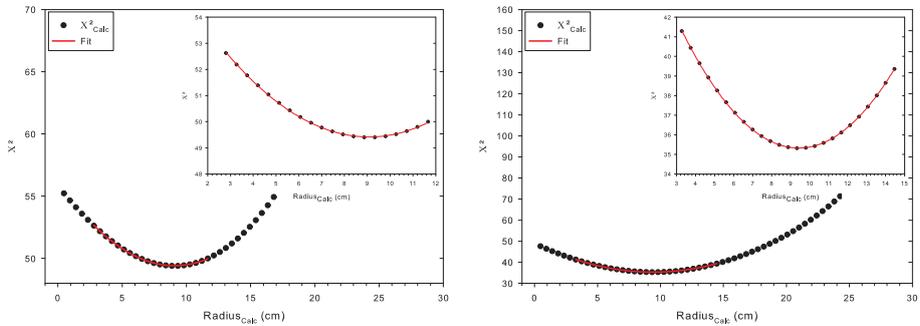
**Tabelle 7.6:** Ergebnisse der Quantifizierung der Cd-Masse ( $m=135,2$  g) in asymmetrischen Proben aus Beton und PE.

Probenbezeichnung	$\Phi_P \cdot 10^{-2}$ ( $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ )	Masse Bestimmt (g)	Abweichung
B-Cd-1	$5,4 \pm 1,9$	$230 \pm 110$	+70 %
B-Cd-2	$5,3 \pm 1,8$	$200 \pm 90$	+48 %
PE-Cd-1	$3,8 \pm 1,4$	$300 \pm 140$	+120 %
PE-Cd-2	$3,6 \pm 1,3$	$200 \pm 90$	+48 %

Hauptmatrix: B (Beton); P (PE). Probe: Cd-1 (Cd-Blech in PE); Cd-2 (Cd-Blech in Beton)



**Abbildung 7.16:** Ergebnisse der  $\chi^2$ -Minimierung der Lokalisation des Cd-Blechs der Proben B-Cd-1 (links) und B-Cd-2 (rechts). Der Fit entspricht einer quadratischen Funktion (Zoom).



**Abbildung 7.17:** Ergebnisse der  $\chi^2$ -Minimierung der Lokalisation des Cd-Blechs in den Proben PE-Cd-1 (links) und PE-Cd-2 (rechts). Der Fit entspricht einer quadratischen Funktion (Zoom).

## 8 INTERFERENZEN IN DER BESTIMMUNG DES THERMISCHEN NEUTRONENFLUSSES

Wie bereits erwähnt, erfolgt die Bestimmung des thermischen Neutronenflusses innerhalb der Abfallmatrix durch die Messung der emittierenden prompten  $\gamma$ -Linien von  $^{56}\text{Fe}$  aus der Aktivierung des Stahlfasses. Jedoch könnte die Abfallmatrix Eisen in unterschiedlicher Form und Menge beinhalten, sodass durch die interferierende prompte  $\gamma$ -Emission von  $^{56}\text{Fe}$  zu einer fehlerhaften Ermittlung des thermischen Neutronenflusses und dementsprechend zu einer inkorrekten Quantifizierung der Elementzusammensetzung führen würde. Es könnte weiterhin denkbar sein, dass zusätzlich zur Abfallmatrix ein Eisen-Inliner zwischen der Abfallmatrix und dem Stahlfassmantel angebracht wurde, um den Strahlenschutz des Betriebspersonals, beispielsweise beim Transport des Abfallbehälters, gewährleisten zu können. Derartige Eisen-Inliner absorbieren sowohl die emittierende  $\gamma$ - als auch Neutronenstrahlung aus dem Abfallprodukt sowie die neutroneninduzierte  $\gamma$ -Strahlung.

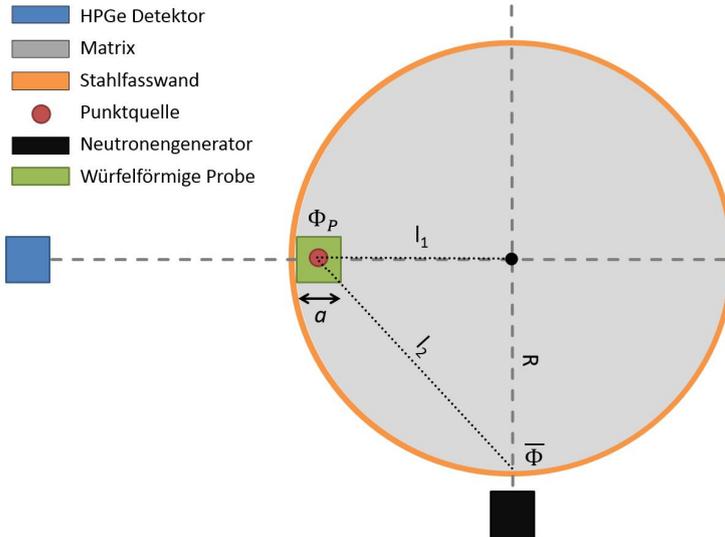
Aus den hier genannten Gründen und denen aus Kapitel 1.3, wurde in dieser Studie der Einfluss zusätzlichen Eiseninhalts im Abfallfass für folgende Fälle untersucht:

- Lokale Eisenprobe (Heterogen)
- Homogene Verteilung von Eisen
- Eisen-Inliner zwischen Matrix und Stahlfassmantel

Mittels der bereits in dieser Arbeit verwendeten validierten Gleichungen für die Charakterisierung unterschiedlicher Proben, werden die Prompt- $\gamma$ -Zählraten von  $^{56}\text{Fe}$  des Stahlfasses und der oben genannten Fälle aus der Aktivierung mit thermischen/epithermischen Neutronen errechnet. Anschließend wurden die Auswirkungen des zusätzlichen Eiseninhalts auf die Bestimmung des thermischen Neutronenflusses quantifiziert und ggf. eine Methode zur Korrektur vorgeschlagen.

## 8.1 LOKALE EISENPROBE

Für eine lokal konzentrierte, würfelförmige Eisenprobe, mit der Kantenlänge  $a$  (cm), wird der geometrische Fall, wie schematisch in Abbildung 8.1 dargestellt, untersucht. Die Position der Eisenprobe befindet sich auf Höhe des Detektors und unmittelbar an der Stahlfasswand. Die Probe ist zum Detektor hin ausgerichtet und besitzt daher den geringsten Abstand zum Detektor und damit die größte Nachweiseffizienz im gesamten Probenfass.



**Abbildung 8.1:** Schematische Darstellung der Probenanordnung für die lokal konzentrierte Eisenprobe in einem Abfallfass.

Die Zählrate  $Z_{Fe}(E\gamma)$  ( $s^{-1}$ ) der aus der Eisenprobe emittierten prompten  $\gamma$ -Linien von  $^{56}Fe$  werden analytisch nach Gleichung 7.7, unter Berücksichtigung der in Kapitel 5 beschriebenen experimentellen Bedingungen, berechnet. Der thermische Neutronenfluss in der Betonmatrix an der Position der Eisenprobe (Schwerpunkt des Würfels) wird nach Gleichung 7.6 ermittelt. Als Referenz-Zählrate  $Z_{Fass}(E\gamma)$  dienen die gemessenen Zählraten der aus dem Stahlfass befüllt mit Beton emittierten prompten  $\gamma$ -Linien von  $^{56}Fe$ . Da für diese Probenposition die größte Zählratenänderung erwartet werden kann, wird die Masse  $m$  der würfelförmigen Eisenprobe im Bereich von 0,01 kg bis 15 kg variiert. Die Kantenlänge variiert hiermit zwischen 1,08 cm bis 12,4 cm.

Es ist zu erwarten, dass sich mit zunehmender Eisenmasse die Zählrate der  $\gamma$ -Linie von Eisen erhöht, gleichzeitig diese aber aufgrund der Neutronen- und  $\gamma$ -Selbstabsorption durch die zunehmende Eisenmasse wiederum reduziert wird. Eine vollständige, homogene Aktivierung der Probe kann aufgrund der geringen Eindringtiefe der thermischen Neutronen, insbesondere für eine dicke Probe, nicht angenommen werden.

Vor diesem Hintergrund wurde eine MCNP-Studie (F8-Tally) durchgeführt, in der die Zählraten der Prompt- $\gamma$ -Linien von Eisen und die Prompt- $\gamma$ -Linien relevanter Isotope des Betons ( $^1\text{H}$ ,  $^{10}\text{B}$ ,  $^{28}\text{Si}$ ,  $^{40}\text{Ca}$ ), als Funktion ausgewählter Kantenlängen (25-125mm) der lokal konzentrierten Probe untersucht, wurden. Die Ergebnisse der ermittelten Zählratenverhältnisse, normiert zu einer reinen Betonmatrix, sind in Tabelle 8.1 zusammengefasst. Die Ergebnisse der MCNP-Studie zeigen, dass mit zunehmender Eisenmasse die Zählratenverhältnisse von Eisen ansteigen und die der Isotope des Betons abnehmen. Die  $\gamma$ -Linien der Isotope des Betons unterliegen neben der Selbstabsorption der Matrix noch zusätzlichen Abschirmung durch die Eisenprobe. Die Abschwächung der Prompt- $\gamma$ -Strahlung dieser Isotope nimmt linear mit zunehmender Eisenmasse zu.

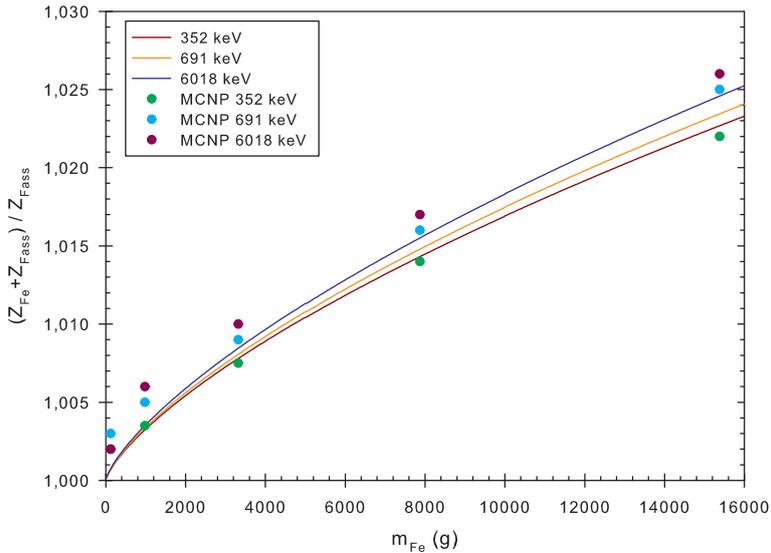
**Tabelle 8.1:** Zählratenverhältnisse relevanter Prompt- $\gamma$ -Linien als Funktion der Eisenprobendicke. Die Ergebnisse aus den MCNP-Simulationen sind normiert zur Probe „Nur Beton“.

Eisenprobe Kantenlänge $a$	$m_{\text{Eisen}}$ (kg)	$^{56}\text{Fe}$ 352 keV	$^{56}\text{Fe}$ 691 keV	$^{56}\text{Fe}$ 6018 keV	$^1\text{H}$ 2223 keV	$^{10}\text{B}$ 477 keV	$^{28}\text{Si}$ 3538 keV	$^{40}\text{Ca}$ 1942 keV
<b>Nur Beton</b>	-	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000
<b>25mm</b>	0,12	1,002	1,003	1,002	1,000	0,981	0,991	0,974
<b>50mm</b>	0,98	1,004	1,005	1,006	0,999	0,977	0,975	0,963
<b>75mm</b>	3,32	1,008	1,009	1,010	0,986	0,975	0,896	0,956
<b>100mm</b>	7,87	1,014	1,016	1,017	0,987	0,974	0,881	0,936
<b>125mm</b>	15,38	1,022	1,025	1,026	0,981	0,972	0,863	0,916

Die analytisch berechneten Zählraten der prompten  $\gamma$ -Linien von Eisen sind mit denen der MCNP-Studie in Abbildung 8.2 gegenübergestellt. Die Abbildung zeigt das Verhältnis der Summe der Zählraten der  $\gamma$ -Linie der Eisenprobe in der Betonmatrix und der Zählrate der  $\gamma$ -Linie des Stahlfasses ( $Z_{\text{Fe}}(E\gamma) + Z_{\text{Fass}}(E\gamma)$ ), zur Referenz-Zählrate der  $\gamma$ -Linie des Stahlfasses gefüllt mit Beton  $Z_{\text{Fass}}(E\gamma)$ , ohne zusätzliche Eisenprobe, als Funktion der Eisenmasse  $m$ .

Mit zunehmender Probenmasse erhöht sich das analytisch-bestimmte Verhältnis der Zählraten der jeweiligen  $\gamma$ -Linien und geht mit zunehmender Probenmasse in eine Sättigung über. Unter Berücksichtigung einer Unsicherheit von ca. 10 %, die durch die Bestimmung des Neutronenflusses und der Detektor-Effizienz begründet ist, stimmen die analytischen Werte mit den Ergebnissen der MCNP-Simulation gut überein.

Die Verhältnisse der Summe der Zählraten der  $\gamma$ -Linien von Eisen zur den Referenz-Zählraten  $Z_{\text{Fass}}$  liegen für die betrachteten Probenmassen unter 3 %. Die Anwesenheit einer lokal konzentrierten Eisenprobe in der Betonmatrix führt zu keiner signifikanten Erhöhung des Eisensignals und interferiert damit nicht bei der Bestimmung des thermischen Neutronenflusses durch das Stahlfass. Die Tatsache der partiellen Abschirmung der prompten  $\gamma$ -Linien der Hauptelemente von Beton durch die lokale Eisenprobe kann möglicherweise für die weitere Informationsgewinnung, in Bezug auf die Lokalisation der Eisenprobe, herangezogen werden.



**Abbildung 8.2:** Zähllatenverhältnisse relevanter  $\gamma$ -Linien von Eisen als Funktion der Eisenmasse nach Gleichung 7.7 (durchgezogene Linien).

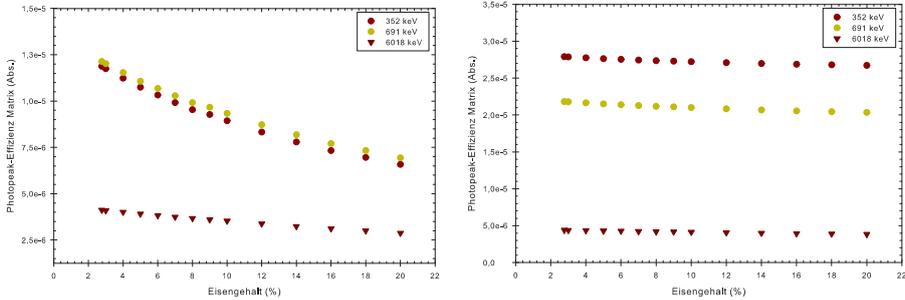
## 8.2 HOMOGENE VERTEILUNG VON EISEN

Der Einfluss einer erhöhten Konzentration von Eisen in der Betonmatrix auf die Bestimmung des thermischen Neutronenflusses wird studiert. Ausgehend von Gleichung 3.4 gilt für die Gesamtzählrate  $Z_{Total}$  einer  $^{56}\text{Fe}$  prompten  $\gamma$ -Linie:

$$Z_{Total} = \frac{N_A}{M_{Fe}} \cdot \Phi_{th} \cdot f_{Fe} \cdot \left[ \sigma_{E\gamma} + \frac{0,44 \cdot \sigma_{E\gamma} + I(E\gamma)}{5,33} \right] \cdot [m_{Fe}^{Matrix} \cdot \varepsilon_{E\gamma}^{Matrix} + m_{Fe}^{Fass} \cdot \varepsilon_{E\gamma}^{Fass}] \quad 8.1$$

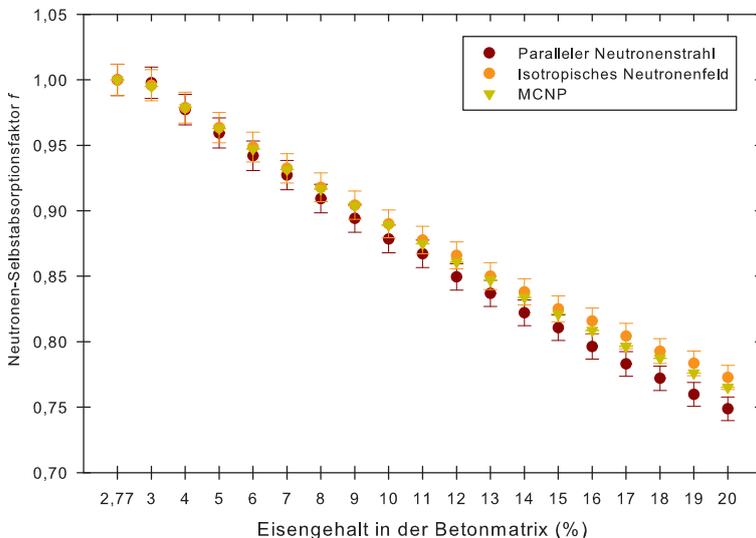
Hierbei ist  $\Phi_{th}$  der experimentell bestimmte thermische Neutronenfluss für eine Betonmatrix mit einem Eisengehalt von 2,77 %,  $f$  der Neutronen-Selbstabsorptionsfaktor relativ zur Betonmatrix ( $f_{Fe} = 1$  für die Betonmatrix),  $m_{Fe}^{Matrix}$  die Masse von Eisen in der Matrix,  $\varepsilon_{E\gamma}^{Matrix}$  die Photopeak-Effizienz für die Matrix,  $m_{Fe}^{Fass}$  die Masse von Eisen im Stahlfass und  $\varepsilon_{E\gamma}^{Fass}$  die Photopeak-Effizienz für das Stahlfass. Die Photopeak-Effizienz für die Matrix und das Stahlfass wurde mit der in Kapitel 3.5 beschriebenen numerischen Methode für großvolumige Proben berechnet. Die Bestimmung des Neutronen-Selbstabsorptionsfaktors erfolgte nach der Methode in Kapitel 3.4 für einen endlich ausgedehnte Zylinder und ein paralleles oder ein isotropes Neutronenfeld sowie durch MCNP-Simulationen. Die Abhängigkeit der Photopeak-Effizienz ausgewählter  $^{56}\text{Fe}$ - $\gamma$ -Linien ist für die Betonmatrix und für das Stahlfass mit unterschiedlichem Eisengehalt in Beton in Abbildung 8.3 gezeigt. Wie erwartet führt eine Erhöhung des Eisengehalts in Beton bzw. eine Zunahme der Matrixdichte zu einer Abnahme

der Photopeak-Effizienz der Betonmatrix. Diese Abnahme ist selbstverständlich für niederenergetische  $\gamma$ -Linien stärker ausgeprägt.



**Abbildung 8.3:** Photopeak-Effizienz ausgewählter  $^{56}\text{Fe}$ -Linien für die Betonmatrix (links) und für das Stahlfass (rechts) als Funktion des Eisengehalts in der Betonmatrix.

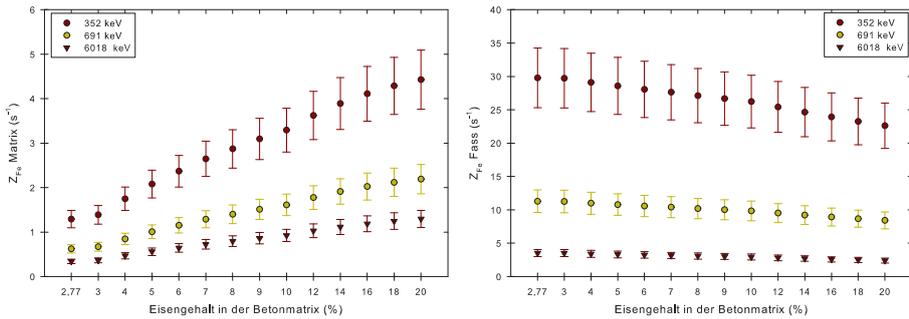
Die Variation des Neutronen-Selbstabsorptionsfaktor  $f$  mit dem Eisengehalt der Betonmatrix ist in Abbildung 8.4 gezeigt. Bis zu einer Eisenkonzentration von ca. 10 % stimmen die analytisch berechneten Neutronen-Selbstabsorptionsfaktoren mit denen der MCNP-Simulationen innerhalb ihrer Unsicherheiten überein. Ab einem Eisengehalt >10 % stimmen die Neutronen-Selbstabsorptionsfaktoren nur noch für den Fall eines isotropischen Neutronenfeldes mit denen der MCNP-Simulationen.



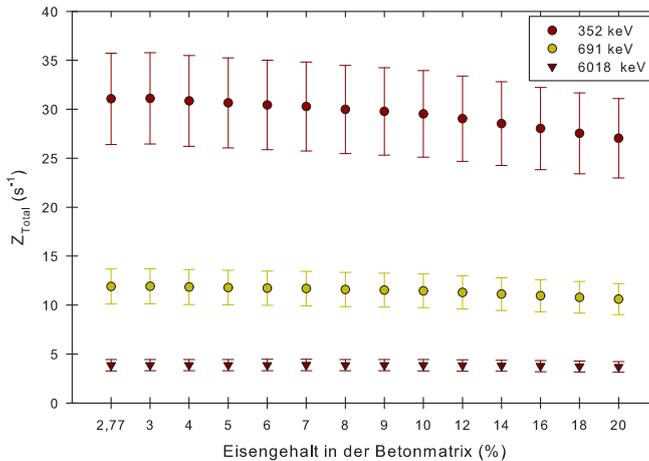
**Abbildung 8.4:** Neutronen-Selbstabsorptionsfaktor  $f$  als Funktion des Eisengehalts in der Betonmatrix.

Die berechneten Zählraten der ausgewählter  $\gamma$ -Linien die aus der Matrix (Gleichung 8.1 für  $m_{\text{Fe}}^{\text{Fass}} \cdot \epsilon_{\text{E}\gamma}^{\text{Fass}} = 0$ ) und aus dem Stahlfass (Gleichung 8.1 für  $m_{\text{Fe}}^{\text{Matrix}} \cdot \epsilon_{\text{E}\gamma}^{\text{Matrix}} = 0$ ) emittiert sind,

sind als Funktion des Eisengehaltes der Matrix in Abbildung 8.5 gezeigt. Für die Matrix steigen die Zählraten mit zunehmender Eisenkonzentration an, gehen jedoch aufgrund der  $\gamma$ -Selbstabsorption, in die Sättigung über. Die Zählraten für das Stahlfass sind deutlich höher als die Zählraten für die Matrix. Aufgrund der  $\gamma$ -Absorption durch die Matrix nehmen die Zählraten des Stahlfasses mit zunehmender Eisenkonzentration leicht ab. Die Gesamtzählrate der  $\gamma$ -Linien sind als Funktion des Eisengehalts in Abbildung 8.6 dargestellt. Lediglich die Zählrate der niederenergetischen  $\gamma$ -Linie bei 352 keV nimmt mit zunehmendem homogenem Eisengehalt in der Betonmatrix ab. Die Zählraten der höherenergetischen  $\gamma$ -Linien von Eisen bleiben hingegen innerhalb der Unsicherheiten konstant.



**Abbildung 8.5:** Zählraten ausgewählter  $^{56}\text{Fe}$ - $\gamma$ -Linien der Matrix (links) und des Stahlfasses (rechts) als Funktion der Eisenkonzentration in der Betonmatrix.



**Abbildung 8.6:** Gesamte Zählrate ausgewählter  $^{56}\text{Fe}$ - $\gamma$ -Linien als Funktion des Eisengehalts in der Betonmatrix.

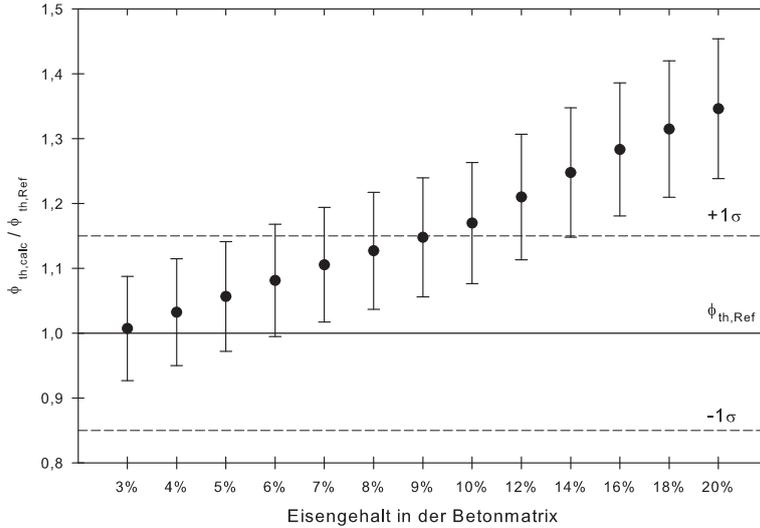
Für die Bestimmung des thermischen Neutronenflusses einer Betonmatrix mit möglicherweise erhöhtem Eisengehalt wurde folgende Methode (Abbildung 8.7) entwickelt. Ausgangspunkt ist die Annahme eines 200l Stahlfasses gefüllt mit einer Betonmatrix mit unbekanntem Eisengehalt. Im ersten Schritt wird die Dichte der Abfallmatrix, respektive der Betonmatrix mittels der gegebenen Masse des Abfallfasses bestimmt. Im zweiten Schritt wird die Photopeak-

Effizienz für das Stahlfass, auf Grundlage der zuvor berechneten Dichte und den Massenschwächungskoeffizienten der Referenz-Betonmatrix (2,77 % Eisen) berechnet. Im dritten Schritt erfolgt die Berechnung des thermischen Neutronenflusses  $\Phi_{th,calc}$  ( $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ), mittels der Zählrate gemessener  $\gamma$ -Linien von  $^{56}\text{Fe}$  (Gleichung 3.4). Im letzten Schritt wird der berechnete thermische Neutronenfluss mit dem erwarteten thermischen Neutronenfluss  $\Phi_{th,Ref}$  ( $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ) des Stahlfasses mit der Referenz-Betonmatrix verglichen. Die Unsicherheit ( $1\sigma$ ) für den berechneten thermischen Neutronenfluss  $\Phi_{th,calc}$  entspricht der Messstatistik bei einer Messzeit von 1 Stunde, abgeleitet aus dem experimentell bestimmten thermischen Neutronenflusses  $\Phi_{th,Ref}$ .



**Abbildung 8.7:** Schritte der Methode zur Bestimmung des thermischen Neutronenflusses in einer Betonmatrix mit unbekanntem Eisengehalt.

In Abbildung 8.8 ist das Verhältnis des berechneten thermischen Neutronenflusses  $\Phi_{th,calc}$  zum thermischen Referenz-Neutronenfluss  $\Phi_{th,Ref}$  aufgezeigt. Die durchgezogene Linie repräsentiert den experimentell bestimmten thermischen Neutronenfluss der Referenz-Betonmatrix mit seinem Vertrauensintervall von ( $1\sigma$ ). Für eine Messzeit von 1 Stunde erfolgt die Identifizierung von Eisen in der Betonmatrix ab einer Eisenkonzentration von ca. 9 %.

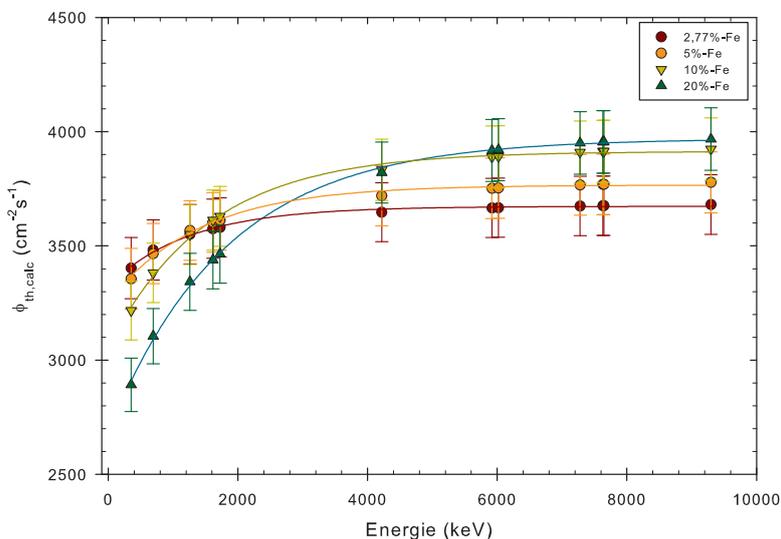


**Abbildung 8.8:** Verhältnisse der berechneten Neutronenflüsse  $\Phi_{th,calc}$  zum Referenz-Neutronenfluss  $\Phi_{th,Ref}$  ( $3300 \pm 200 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) als Funktion der Eisenkonzentration in der Matrix.

Um eine Bestimmung des Eisengehalts einer Betonmatrix vornehmen zu können ist es notwendig, die individuellen thermischen Neutronenflüsse, die aus den jeweiligen  $^{56}\text{Fe}$   $\gamma$ -Linien ermittelt sind, zu betrachten. Im Folgenden wird für die Identifizierung von homogenen Eisen in der Betonmatrix das bisherige Verfahren hierzu variiert. Abbildung 8.9 zeigt exemplarisch die berechneten thermischen Neutronenflüsse für ausgewählte Eisengehalte in der Betonmatrix als Funktion der Energie der  $^{56}\text{Fe}$ - $\gamma$ -Linien. Für die Prompt- $\gamma$ -Linien von Eisen mit einer Energie höher 4000 keV bleibt der berechnete thermische Neutronenfluss für einen spezifischen Eisengehalt konstant. Weiterhin nimmt der berechnete thermische Neutronenfluss für diese  $\gamma$ -Energien mit zunehmendem Eisengehalt in der Betonmatrix zu. Für die  $\gamma$ -Linien von  $^{56}\text{Fe}$  mit Energien niedriger 2000 keV ist hingegen eine Abnahme des berechneten thermischen Neutronenflusses für einen spezifischen Eisengehalt erkennbar. Die Abnahme des berechneten thermischen Neutronenflusses aus den niederenergetischen  $\gamma$ -Linien von  $^{56}\text{Fe}$  verstärkt sich mit zunehmendem Eisengehalt in der Betonmatrix. Beispielsweise zeigt die 352 keV  $\gamma$ -Linie die größte Reduktion des thermischen Neutronenflusses abhängig vom Eisengehalt in der Betonmatrix. Dies resultiert aus der entsprechend höheren Absorption der  $\gamma$ -Strahlung durch den erhöhten Eisengehalt in der Matrix. Eine Identifizierung von Eisen ist somit möglich. Die Abhängigkeit des berechneten thermischen Neutronenflusses  $\Phi_{th,calc}$  von der  $\gamma$ -Energie  $E_\gamma$  (keV) durch die Analyse dieses Effekts wurde mit folgender Funktion parametrisiert:

$$\Phi_{th,calc.} = \Phi_0 + a \cdot (1 - e^{-b \cdot E_\gamma}) \quad 8.2$$

Hierbei ist  $\Phi_0$  ( $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) der Wert des thermischen Neutronenflusses für  $E_\gamma = 0$  (keV),  $a$  ( $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) die Steigung der Funktion,  $b$  ( $\text{keV}^{-1}$ ) der Koeffizient für die asymptotische Annäherung.



**Abbildung 8.9:** Berechnete thermische Neutronenflüsse als Funktion der Energie der  $^{56}\text{Fe}$ - $\gamma$ -Linien für ausgewählte Eisengehalte in der Betonmatrix. (Die durchgezogenen Linien stellen den Fit der Daten nach Gleichung 8.2 dar.)

Es wurden die berechneten Neutronenflüsse  $\Phi_{\text{th,calc}}$  der jeweiligen  $^{56}\text{Fe}$   $\gamma$ -Linie für verschiedene Eisengehalte (2,77 % bis 20 %) in der Matrix entsprechend der Gleichung 8.2 gefittet und die resultierenden Koeffizienten  $a$  und  $b$  des Fits in Tabelle 8.2 zusammengefasst. Für die Parametrisierung des thermischen Neutronenflusses werden im Folgenden  $\Phi_0$  und  $a$  näher betrachtet.

**Tabelle 8.2:** Koeffizienten der Fits (Gleichung 8.2) für verschiedene Eisengehalte in der Betonmatrix.

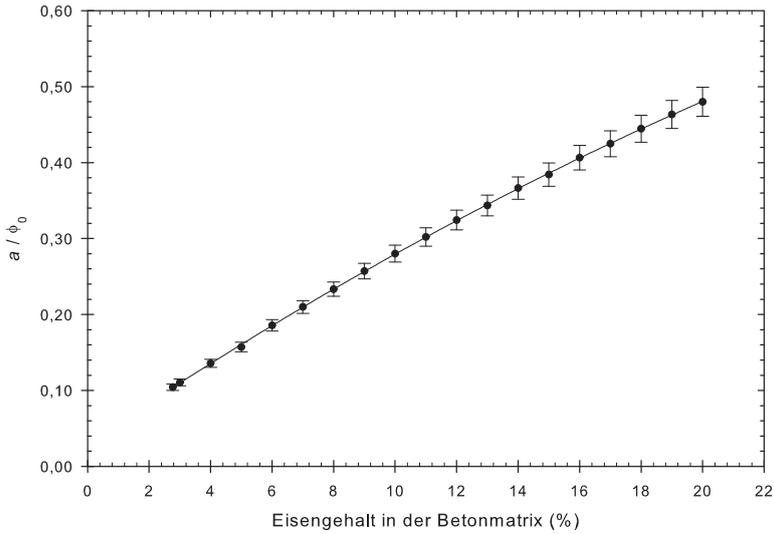
Eisen (%)	$\Phi_0$ ( $\text{cm}^2\text{s}^{-1}$ )	$a$ ( $\text{cm}^2\text{s}^{-1}$ )	$b$ ( $\text{keV}^{-1}$ )	$R^2$
<b>2,77</b>	3326 ± 12	346 ± 12	(8,0 ± 0,4)E-04	0,996
<b>3</b>	3318 ± 13	366 ± 13	(8,0 ± 0,4)E-04	0,995
<b>4</b>	3282 ± 15	445 ± 15	(8,0 ± 0,3)E-04	0,995
<b>5</b>	3254 ± 18	511 ± 18	(7,0 ± 0,4)E-04	0,994
<b>6</b>	3213 ± 18	596 ± 17	(7,5 ± 0,3)E-04	0,999
<b>7</b>	3172 ± 19	665 ± 18	(7,1 ± 0,3)E-04	0,998
<b>8</b>	3133 ± 20	731 ± 19	(7,0 ± 0,3)E-04	0,997
<b>9</b>	3098 ± 20	796 ± 20	(7,0 ± 0,3)E-04	0,999
<b>10</b>	3057 ± 20	856 ± 20	(6,1 ± 0,2)E-04	0,999
<b>11</b>	3004 ± 20	907 ± 20	(6,1 ± 0,3)E-04	0,998
<b>12</b>	2986 ± 20	968 ± 20	(6,1 ± 0,2)E-04	0,998
<b>13</b>	2931 ± 20	1007 ± 20	(6,1 ± 0,2)E-04	0,998
<b>14</b>	2898 ± 20	1062 ± 19	(6,1 ± 0,2)E-04	0,999
<b>15</b>	2861 ± 20	1099 ± 19	(6,1 ± 0,2)E-04	0,998
<b>16</b>	2826 ± 20	1148 ± 19	(6,1 ± 0,2)E-04	0,999
<b>17</b>	2797 ± 14	1188 ± 12	(6,0 ± 0,2)E-04	0,999
<b>18</b>	2750 ± 19	1222 ± 18	(6,0 ± 0,2)E-04	0,997
<b>19</b>	2713 ± 15	1256 ± 13	(6,0 ± 0,2)E-04	0,998
<b>20</b>	2682 ± 18	1287 ± 16	(5,9 ± 0,2)E-04	0,997

$R^2$  gibt die Güte des Fits an.

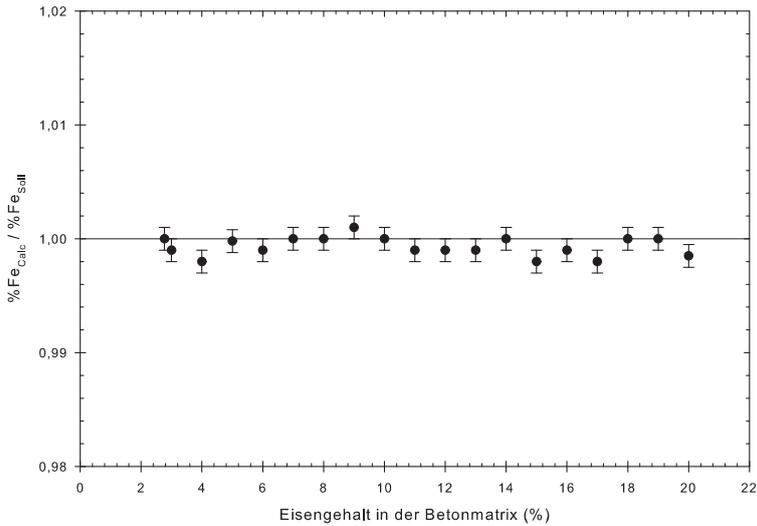
Für die Bestimmung des erhöhten Eisengehalts in der Betonmatrix wird das Verhältnis zwischen den Koeffizienten  $a$  und  $\Phi_0$  gebildet und als Funktion des Eisengehalts aufgetragen (Abbildung 8.10) sowie mit dem nachfolgenden Polynom gefittet:

$$\frac{a}{\Phi_0} = -2,428 \cdot 10^{-4} \cdot (Fe \text{ in } \%)^2 + 2,74 \cdot 10^{-2} \cdot (Fe \text{ in } \%) + 2,97 \cdot 10^{-2} \quad 8.3$$

Die Koeffizienten des Polynoms ergeben sich aus dem Fit. Die nach Gleichung 3.4 und Gleichung 8.3 berechneten Eisengehalte stimmen mit den Sollwerten gut überein (Abbildung 8.11). Die relative Unsicherheit resultiert aus dem vorherigen Fit und beträgt 0,1 %. Die berechneten Werte für den homogenen Eisengehalt stimmen innerhalb der Unsicherheiten mit den Sollwerten überein. Die Abweichung der berechneten Werte zu den Sollwerten beträgt < 1 %.



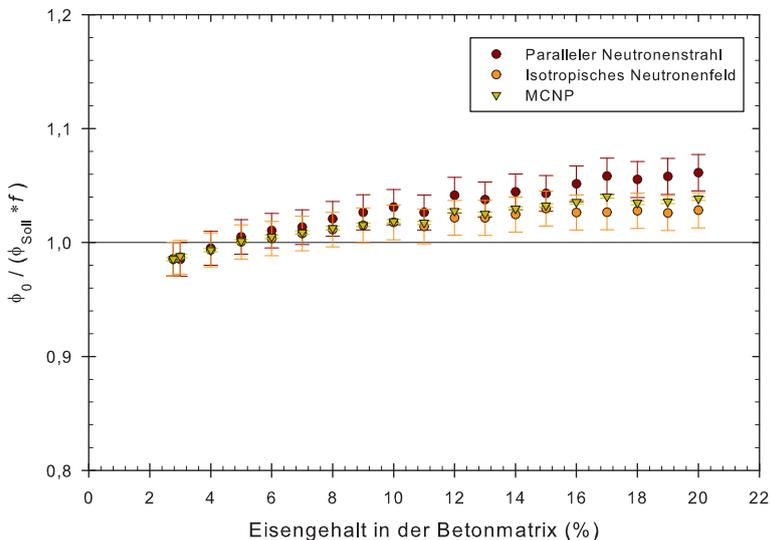
**Abbildung 8.10:** Verhältnis  $a/\Phi_0$  als Funktion des Eisengehalts in der Betonmatrix ( $R_{\text{Fit}}^2 = 0,99$ ). Die durchgezogene Linie stellen den Fit der Daten nach Gleichung 8.3 dar.



**Abbildung 8.11:** Verhältnis zwischen dem berechneten Eisengehalt  $\%Fe_{\text{calc}}$  und dem Sollwert des Eisengehalts der Betonmatrix  $\%Fe_{\text{soll}}$  als Funktion des Eisengehalts in der Betonmatrix.

Um die Methode zur Bestimmung des Eisengehalts in einer Betonmatrix zu verifizieren, wurde folgende Hypothese aufgestellt: Hierbei wird der Fit-Koeffizient  $\Phi_0$  aus Gleichung 8.2 als thermischer Neutronenfluss angenommen und mit dem Produkt des Referenz-Neutronenfluss  $\Phi_{th,Ref}$  und den berechneten Neutronen-Selbstabsorptionsfaktoren verglichen (Überprüfung der Beziehung  $\Phi_0/\Phi_{Soll} \cdot f = 1$ ). In Abbildung 8.12 sind die berechneten Verhältnisse der Neutronenflüsse als Funktion des Eisengehalts in der Betonmatrix aufgetragen. Die Verhältnisse weichen mit zunehmendem Eisengehalt in der Betonmatrix systematisch ab. Die Berechnungen der Neutronen-Selbstabsorptionsfaktoren für ein isotropisches Neutronenfeld und aus den MCNP-Simulationen weisen eine maximale Abweichung von 3 % bzw. 4 % zum Sollwert auf. Im Fall des Neutronen-Selbstabsorptionsfaktors für einen parallelen Neutronenstrahl beträgt die maximale Abweichung 7 % vom Sollwert.

Aufgrund der vorliegenden Ergebnisse kann die Schlussfolgerung gezogen werden, dass unter Berücksichtigung der experimentellen Bedingungen für 1 Stunde Messzeit, die Identifizierung von Eisen in der Betonmatrix ab einer Eisenkonzentration von ca. 9 % im Konfidenzintervall von  $1\sigma$  mittels dieses Verfahrens erfolgen kann.

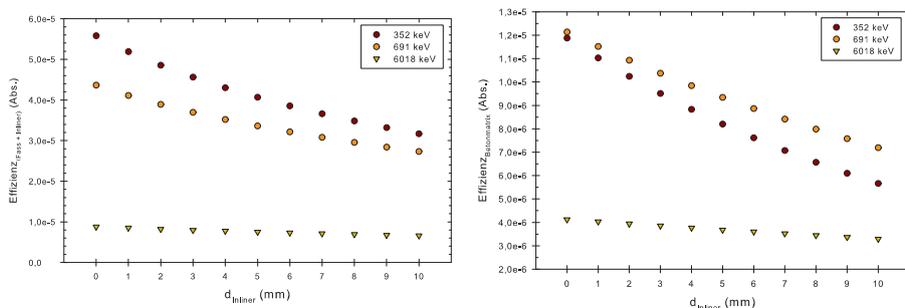


**Abbildung 8.12:** Verhältnis zwischen dem ermittelten Koeffizienten  $\Phi_0$  und dem Produkt des Soll-Neutronenflusses  $\Phi_{Soll}$  und der berechneten Neutronen-Selbstabsorptionsfaktoren.

### 8.3 EISEN-INLINER ZWISCHEN MATRIX UND STAHLFASSMANTEL

Im letzten Fall wird untersucht, welchen Einfluss Eisen-Inliner verschiedener Dicke auf die Bestimmung des thermischen Neutronenflusses haben. Zuerst wurde die Photopeak-Effizienz der Betonmatrix (Referenz Betonmatrix mit 2,77 % Eisengehalt) und des Stahlfasses in Anwesenheit eines Eisen-Inliners mit verschiedenen Dicken (1 mm bis 10 mm) mit der in Kapitel 3.4 beschriebenen Methode berechnet. Die Ergebnisse sind als Funktion der Dicke des Eisen-Inliners in Abbildung 8.13 aufgezeigt.

Die Photopeak-Effizienzen der 352 keV und der 691 keV  $\gamma$ -Linien von  $^{56}\text{Fe}$  des Stahlfasses mit Eisen-Inliner nimmt mit zunehmender Dicke des Inliners ab. Die hochenergetische 6018 keV  $\gamma$ -Linien von  $^{56}\text{Fe}$  wird hingegen unwesentlich reduziert. Die Photopeak-Effizienzen der 352 keV und der 691 keV  $\gamma$ -Linie für die Betonmatrix reduzieren sich ebenfalls mit zunehmender Dicke des Eisen-Inliners, wobei für die 6018 keV  $\gamma$ -Linie eine maximale Reduktion um ca. 15 %, gegenüber einem Abfallfass ohne Eisen-Inliner, beobachtet werden konnte. Dies entspricht den Erwartungen aufgrund des exponentiellen Schwächungsgesetzes für  $\gamma$ -Strahlung sowie der höheren Absorption niederenergetischer  $\gamma$ -Strahlung aufgrund höherer Massenschwächungskoeffizienten.

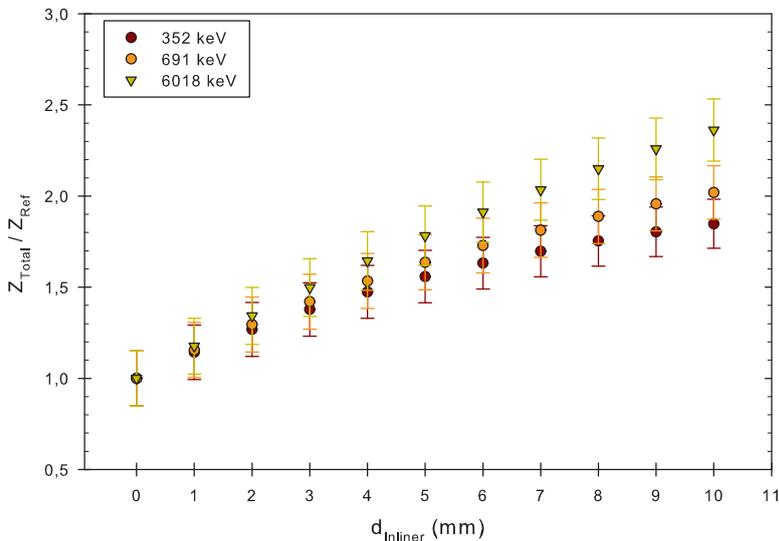


**Abbildung 8.13:** Photopeak-Effizienz für ausgewählte  $^{56}\text{Fe}$   $\gamma$ -Linien für das Stahlfass mit Eisen-Inliner (links) und für die Betonmatrix (rechts) als Funktion der Dicke des Eisen-Inliners.

Weiterhin wurde der Einfluss verschiedener Dicken des Eisen-Inliners auf die Zählrate der  $^{56}\text{Fe}$   $\gamma$ -Linien des Stahlfasses mit Inliner untersucht. Für die Berechnung der Zählrate wurde die Selbstabsorption von Neutronen durch den Eisen-Inliner vernachlässigt. Stattdessen wurde der thermische Neutronenfluss der Referenz-Betonmatrix verwendet. Die Absorption der  $\gamma$ -Strahlung durch den Eisen-Inliners sowie durch die Betonmatrix wurde bereits in der Berechnung der Photopeak-Effizienz berücksichtigt.

Abbildung 8.14 zeigt das Verhältnis der berechneten Zählrate zur Referenz-Zählrate (Fass mit Beton ohne Eisen-Inliner) für die ausgewählte  $^{56}\text{Fe}$   $\gamma$ -Linien als Funktion der Dicke des Eisen-Inliners. Mit zunehmender Dicke des Eisen-Inliners nimmt das Verhältnis der Zählraten der  $^{56}\text{Fe}$   $\gamma$ -Linien zu. Für einen 10 mm dicken Eisen-Inliner erhöht sich das Verhältnis der Zählrate um den Faktor 1,8 für die 352 keV  $\gamma$ -Linie, um den Faktor 2 für die 691 keV  $\gamma$ -Linie und um ca. den Faktor 2,4 für die 6018 keV  $\gamma$ -Linie. Das Verhältnis der Zählrate geht mit zunehmender

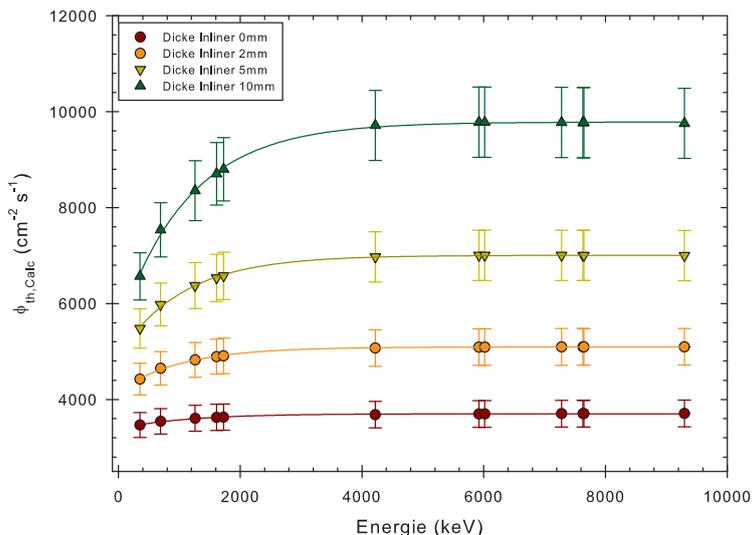
Dicke des Eisen-Inliners in die Sättigung wobei der Effekt für hochenergetische  $\gamma$ -Linien weniger ausgeprägt ist.



**Abbildung 8.14:** Verhältnisse der berechneten Zählrate zur Referenz-Zählrate (Fass mit Beton ohne Eisen-Inliner) ausgewählter  $^{56}\text{Fe}$   $\gamma$ -Linien  $Z_{\text{Total}}/Z_{\text{Ref}}$  als Funktion der Dicke des Eisen-Inliners.

Für die Identifizierung eines Eisen-Inliners im Abfallfass, wird die im vorherigen Kapitel 8.2 verwendete Methode herangezogen. Ausgangspunkt ist hier die Annahme eines Abfallfasses mit Betonmatrix und Eisen-Inliner unbekannter Dicke. Berechnungsgrundlage ist die Annahme eines 200 l Stahlfasses mit der bekannten Wandstärke (1,5 mm). Mit Hilfe der Masse des Abfallfasses wird die Dichte der Abfallmatrix bestimmt und die Photopeak-Effizienz für das Stahlfass numerisch berechnet. Anschließend erfolgt die Bestimmung der Dicke des Eisen-Inliners aus der Berechnung des thermischen Neutronenflusses aus den jeweiligen  $^{56}\text{Fe}$   $\gamma$ -Linien.

Abbildung 8.15 zeigt die berechneten thermischen Neutronenflüsse aus den  $^{56}\text{Fe}$   $\gamma$ -Linien für ausgewählte Dicken eines Eisen-Inliners. Für die  $^{56}\text{Fe}$   $\gamma$ -Linien mit einer Energie höher als 4000 keV bleibt der berechnete thermische Neutronenfluss für eine spezifische Dicke des Eisen-Inliners konstant. Weiterhin nimmt der berechnete thermische Neutronenfluss für diese  $\gamma$ -Energien mit zunehmender Dicke des Eisen-Inliners zu. Für die  $^{56}\text{Fe}$   $\gamma$ -Linien mit Energien niedriger als 2000 keV ist hingegen eine Abnahme des berechneten thermischen Neutronenflusses für eine spezifische Dicke des Eisen-Inliners erkennbar. Die Abnahme des berechneten thermischen Neutronenflusses verstärkt sich mit zunehmender Dicke des Eisen-Inliners. Beispielsweise zeigt die 352 keV  $^{56}\text{Fe}$   $\gamma$ -Linie die größte Änderung des thermischen Neutronenflusses, abhängig von der Dicke des Eisen-Inliners. Dies resultiert aus der entsprechend höheren Absorption der  $\gamma$ -Strahlung durch den Eisen-Inliner.



**Abbildung 8.15:** Berechnete thermische Neutronenflüsse für ausgewählte Dicken des Eisen-Inliners als Funktion der Energie  $^{56}\text{Fe}$ - $\gamma$ -Linien. (Die durchgezogenen Linien stellen den Fit der Daten nach Gleichung 8.2 dar.)

Es wurden die berechneten thermischen Neutronenflüsse der jeweiligen  $^{56}\text{Fe}$ - $\gamma$ -Linien für unterschiedliche Dicken des Eisen-Inliners (0 mm bis 10 mm) entsprechend der Gleichung 8.2 gefittet und die resultierenden Koeffizienten in Tabelle 8.3 zusammengefasst. Mit zunehmender Dicke des Eisen-Inliners nehmen die Koeffizienten  $\Phi_0$  ( $\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$ ) und  $a$  ( $\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$ ) zu. Für die Parametrisierung des thermischen Neutronenflusses in der Betonmatrix werden im Folgenden die Parameter  $\Phi_0$  und  $a$  näher betrachtet.

**Tabelle 8.3:** Koeffizienten des Fits (Gleichung 8.2) für verschiedene Dicken des Eisen-Inliners.

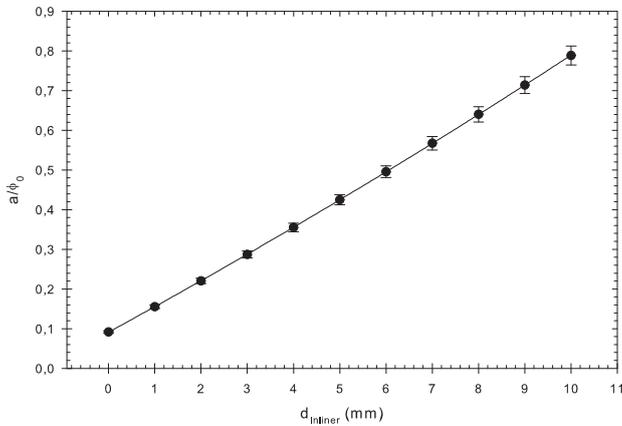
Dicke Inliner (mm)	$\Phi_0$ ( $\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$ )	$a$ ( $\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$ )	$b$ ( $\text{keV}^{-1}$ )	$R^2$
0	$3326 \pm 13$	$345 \pm 13$	$(8,0 \pm 0,6)\text{E-}04$	0,993
1	$3817 \pm 17$	$593 \pm 17$	$(1,0 \pm 0,4)\text{E-}03$	0,998
2	$4173 \pm 23$	$920 \pm 22$	$(1,0 \pm 0,4)\text{E-}03$	0,986
3	$4470 \pm 30$	$1280 \pm 30$	$(1,0 \pm 0,3)\text{E-}03$	0,984
4	$4720 \pm 40$	$1680 \pm 40$	$(1,0 \pm 0,3)\text{E-}03$	0,986
5	$4920 \pm 50$	$2090 \pm 40$	$(9,0 \pm 0,3)\text{E-}04$	0,987
6	$5080 \pm 50$	$2520 \pm 50$	$(9,0 \pm 0,3)\text{E-}04$	0,988
7	$5220 \pm 60$	$2960 \pm 60$	$(9,0 \pm 0,3)\text{E-}04$	0,989
8	$5320 \pm 70$	$3410 \pm 70$	$(9,0 \pm 0,3)\text{E-}04$	0,990
9	$5410 \pm 80$	$3860 \pm 70$	$(9,0 \pm 0,3)\text{E-}04$	0,991
10	$5470 \pm 80$	$4310 \pm 80$	$(9,0 \pm 0,3)\text{E-}04$	0,992

$R^2$  ist die Güte des Fits.

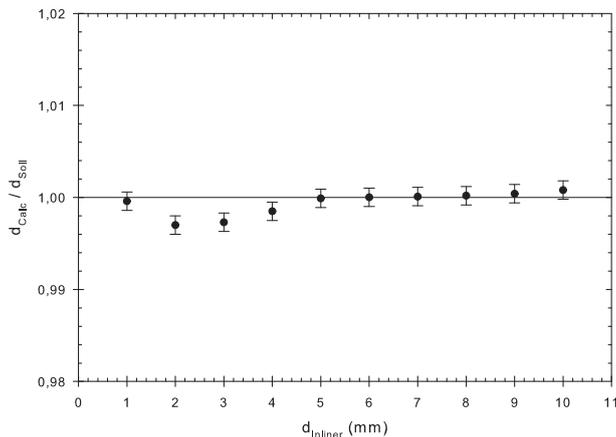
Für die Bestimmung der Dicke des Eisen-Inliners wird das Verhältnis zwischen den Koeffizienten  $a$  und  $\Phi_0$  des Fits aus gebildet und als Funktion der Dicke  $d$  (mm) des Eisen-Inliners aufgetragen (Abbildung 8.16) sowie mit dem folgenden Polynom gefittet:

$$\frac{a}{\Phi_0} = 6,155 \cdot 10^{-4} \cdot (d)^2 + 6,365 \cdot 10^{-2} \cdot (d) + 9,120 \cdot 10^{-2} \quad 8.4$$

Die Koeffizienten des Polynoms ergeben sich aus dem Fit. Um den Erwartungswert  $d_{Soll}$  mit der rekonstruierten Dicke des Eisen-Inliners  $d_{Calc}$  vergleichen zu können, wurde das Verhältnis zwischen der berechneten Dicke des Eisen-Inliners  $d_{Calc}$  und dem zuvor spezifisch angenommenen Eisen-Inliner mit der Dicke  $d_{Soll}$  gebildet. Das Verhältnis zwischen  $a$  und  $\Phi_0$  bildet hierbei die resultierende Dicke des Eisen-Inliners  $d_{Calc}$ . Die Ergebnisse der Gegenüberstellung sind in Abbildung 8.17 aufgezeigt. Die relative Unsicherheit der nach Gleichung 3.4 und Gleichung 8.4 berechneten Dicken der Eisen-Inliner resultiert aus dem vorherig Fit und beträgt 0,1 %. Die berechneten Werte für die Dicke der Eisen-Inliner stimmen innerhalb der Unsicherheiten mit den Sollwerten überein. Die Abweichungen zwischen den berechneten Dicken des Eisen-Inliners und dem Sollwert betragen  $< 1\%$ .



**Abbildung 8.16:** Verhältnis  $a/\Phi_0$  als Funktion der Dicke des Eisen-Inliners  $d_{Inliner}$  ( $R_{Fit}^2 = 0,99$ ). (Die durchgezogene Linie stellen den Fit der Daten nach Gleichung 8.4 dar.)



**Abbildung 8.17:** Verhältnisse zwischen den berechneten Dicken des Eisen-Inliners  $d_{Calc}$  und dem Sollwert des Eisen-Inliners  $d_{Soll}$  als Funktion der Dicke des Eisen-Inliners  $d_{Inliner}$ .

## 9 ZUSAMMENFASSUNG & AUSBLICK

### Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden die Leistungsfähigkeit des MEDINA Verfahrens für die Charakterisierung von heterogenen Mischmatrizes aus Beton und PE sowie für lokal konzentrierte Elemente in 200 l Fässern, im Rahmen von experimentellen Studien evaluiert. Die Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Zur Optimierung der Akquisition der verzögerten  $\gamma$ -Spektren ohne eine nennenswerte Interferenz der prompten  $\gamma$ -Strahlung wurde das Abklingverhalten thermischer Neutronen in Mischmatrizes aus Beton und PE studiert und die Die-Away Time bestimmt. Sie liegt in Abhängigkeit der bestrahlten Matrix zwischen 2 und 5 ms. Hieraus ergibt sich eine Wartezeit für die interferenzfreie Akquisition der verzögerten  $\gamma$ -Strahlung von ca. 12 ms nach den Neutronenpulsen<sup>69</sup>. Zudem wurde die Die-Away Time symmetrischer Mischproben bestimmt und so die Reproduzierbarkeit des Verfahrens nachgewiesen (Kapitel 4.2).
- Mittels der PGNAA wurde der Einfluss der Heterogenität von symmetrischen und asymmetrischen Mischmatrizes aus Beton und PE auf die Quantifizierung der Elementmassen untersucht. Die Ergebnisse stimmen mit einer Unsicherheit von  $\pm 34\%$  ( $2\sigma$ ) (symmetrische Proben)<sup>70</sup> und  $\pm 35\%$  ( $2\sigma$ ) (asymmetrische Proben) gut mit den erwarteten Werten überein.
- Die Charakterisierung im Hinblick auf die elementare Zusammensetzung symmetrischer Mischmatrizes mittels der CNAA ergab, dass die Ergebnisse mit einer Unsicherheit von  $\pm 39\%$  ( $2\sigma$ ) gut mit den erwarteten Werten übereinstimmen. Zudem konnten Aktivierungsprodukte aus den Reaktionen mit schnellen Neutronen ( $^{19}\text{O}$ ,  $^{20}\text{F}$ ,  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{49}\text{Ca}$ ,  $^{52}\text{V}$  und  $^{56}\text{Mn}$ ) im verzögerten  $\gamma$ -Spektrum eindeutig nachgewiesen werden. In Zusammenhang mit der Endlagerung radioaktiver Abfälle wurden die Nachweisgrenzen für ausgewählte chemotoxische Stoffe in symmetrischen Mischproben bestimmt. Sie liegen für Cadmium zwischen 14 und 24 mg / kg, für Quecksilber zwischen 520 und 740 mg / kg und für Blei zwischen 5,5 und 53 g / kg (Messzeit ca. 30 Minuten)<sup>74</sup>.
- Des Weiteren wurde die Leistung des MEDINA-Verfahrens für die Quantifizierung einer lokal konzentrierten Elementmasse (Cadmium-Blech) in homogenen Proben und asymmetrischen Mischmatrizes aus Beton und PE untersucht. Es wurde hierzu ein numerisches Modell zur Quantifizierung, welches die a priori Informationen der PGNAA für die Lokalisation der lokalen Probe nutzt, entwickelt und erfolgreich erprobt. Die Ergebnisse dieser Quantifizierung stimmen für Cadmium in homogenen Matrizen mit einer Unsicherheit von  $\pm 54\%$  ( $2\sigma$ ) und für Cadmium in heterogenen Matrizen mit einer Unsicherheit von  $\pm 72\%$  ( $1\sigma$ ) mit den erwarteten Werten überein.
- Des Weiteren wurde der Einfluss von zusätzlichem Eisen (lokale Probe, homogener Eisengehalt und Eisen-Inliner) in der Probenmatrix auf die Bestimmung des Neutronenflusses hin untersucht. Zusätzliche Eisenmassen können identifiziert und der Einfluss auf die Bestimmung des Neutronenflusses korrigiert werden.

Mit dieser Arbeit wurde ein neuer Stand von Wissenschaft und Technik des MEDINA Verfahrens zur Charakterisierung heterogener radioaktiver Abfälle, in Hinblick auf Genauigkeit und Sensitivität, erreicht.

## Ausblick

Zur Verbesserung der Genauigkeit und Richtigkeit des MEDINA Verfahrens, insbesondere für die Charakterisierung heterogener Abfallmatrize, können ergänzend zur rotationsabhängigen Messungen weitere Informationen, über die Element bzw. Materialverteilung in der Matrix mittels folgenden zerstörungsfreien Verfahren, gewonnen werden:

- High-Energy X-Ray Imaging Systeme mit kompakten Elektronenbeschleunigern (LINAC: Linear Accelerator) <sup>79</sup>. Hochenergetische Photonen (6 bis 15 MeV) mit einem Fluss von ca.  $10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  werden durch die Bestrahlung von hohen Z-Materialien (z. B. Pb oder Ta-Target), mit hochenergetischen Elektronen (mehrere 100 keV), erzeugt. Zur Radiographie bzw. Tomographie von großvolumigen Objekten werden CdTe oder CdZnTe-Detektor verwendet.
- Assoziierte Partikel Technik (ATP) mit 14 MeV „tagged“ Neutronen <sup>80</sup>. Die durch 14 MeV Neutronen induzierte inelastische prompte  $\gamma$ -Strahlung wird in Koinzidenz mit den Alpha-Teilchen gemessen, die im Neutronengenerator aus der D-T Fusionsreaktion entstehen. Hierzu wird beispielsweise ein Neutronengenerator mit einem Alpha-Detektor gekoppelt. Aus der Koinzidenzmessung wird die Flugzeit der schnellen Neutronen ermittelt und damit der Entstehungsort der inelastischen prompten  $\gamma$ -Strahlung bestimmt.
- Gamma-Ray Tracking mit großvolumigen hochsegmentierten HPGe-Detektoren <sup>81 82</sup>. Basierend auf der Relation zwischen Streuwinkel und Energien des  $\gamma$ -Quants und des Elektrons beim Compton-Effekt, wird der Detektor als Compton-Kamera genutzt. Somit ist die Lokalisierung des Entstehungsorts der prompten  $\gamma$ -Strahlung möglich und von der Untergrundstrahlung zu diskriminieren.

Die Sensitivität des MEDINA Verfahrens kann durch folgendes erhöht werden:

- Verbesserung der Neutronen und  $\gamma$ -Abschirmung des HPGe-Detektors zur Reduktion der Untergrundstrahlung <sup>83</sup>.
- Optimierung der Pulslänge (Bestrahlungsdauer) und der Repetitionsperiode (Abklingzeit) der schnellen Neutronenpulse zum Nachweis der mit schnellen Neutronen gebildeten Aktivierungsprodukte (z. B.  $^{207\text{m}}\text{Pb}$ ), in Bezug auf ihre Halbwertszeiten.

---

<sup>79</sup> Estre N, Eck D, Pettier JL, Payan E, Roure C, Simon E (2015) High-energy X-ray Imaging applied to nondestructive characterization of large nuclear waste drums. IEEE Trans Nucl Sci. Doi:10.1109/TNS.2015.2498190

<sup>80</sup> Carasco C, Perot B, Mariani A, El Kanawati W, Valkovic V, Sudac D, Obhodas J (2010) Material characterization in cemented radioactive waste with the associated particle technique. Nucl Instrum Methods Phys Res A. Doi: 10.1016/j.nima.2009.10.085

<sup>81</sup> Cooper RJ, Radford DC, Hausladen PA, Lagergren K (2011) A novel HPGe-detector for gamma-ray tracking and imaging. Nucl Instrum Methods Phys Res A. Doi: 10.1016/j.nima.2011.10.008

<sup>82</sup> Yee RM, Shaw TJ, Gozani T (2009) Thermal neutron die-away studies in a 14 MeV neutron-based active interrogation system. IEEE Trans Nucl Sci. Doi: 10.1109/TNS.2009.2017373

<sup>83</sup> Nicol T, Mauerhofer E, Carasco C, Perot B, Collot J (2016) HPGe-detector shielding optimization with MCNP for the MEDINA neutron activation cell. J Radioanal Nucl Chem Doi: 10.1007/s10967-016-4816-3

## LITERATURVERZEICHNIS

- | Nr. | Quelle  |
|-----|---|
|     | <i>Kurzzusammenfassung</i>  |
| 1   | <i>Peter Brennecke (Hrsg.): Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle (Endlagerungsbedingungen, Stand: Oktober 2010) – Endlager Konrad – Bundesamt für Strahlenschutz, SE-IB-29/08-REV-1</i>   |
| 2   | <i>E. Mauerhofer, R. Odoj: Messmethoden zur Charakterisierung radioaktiver Abfälle und zur Freimessung von Reststoffen aus der Stilllegung kerntechnischer Anlagen (MESRAB) Lehrstuhl für Werkstoffchemie RWTH Aachen University (März 2006)</i>  |
| 3   | <i>John Kettler: Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfälle, Reihe Energie &amp; Umwelt – Band 82; Schriften des Forschungszentrum Jülich; ISBN 978-3-89336-665-1; D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2010)</i>  |
| 4   | <i>E. Mauerhofer, A. Havenith: The MEDINA facility for the assay of the chemotoxic inventory of radioactive packages (2014) J Radioanal Nucl Chem 483:488 Doi 10.1007/s10967-014-3210-2</i>   |
| 5   | <i>Andreas Havenith: Stoffliche Charakterisierung radioaktiver Abfallprodukte durch ein Multi-Element-Analyseverfahren basierend auf der instrumentellen Neutronen-Aktivierungs-Analyse -MEDINA-; Reihe Energie &amp; Umwelt – Band 248; Schriften des Forschungszentrum Jülich ISBN 978-3-95806-033-3; D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2014)</i> |
|     | <i>Kapitel 1</i>  |
| 6   | <i>Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz: AtG) in der Fassung der Bekanntmachung vom 15. Juli 1985 (BGBl. I S. 1565), das zuletzt durch Artikel 5 Absatz 6 des Gesetzes vom 24. Februar 2012 (BGBl. I S. 212) geändert worden ist.</i>   |
| 7   | <i>Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung – StrlSchV 9. Auflage, 01. November 2011</i>  |
| 8   | <i>Bundesministerium für Umwelt Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMUB): Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle; Techn. Ber. Berlin, 2010.</i>  |
| 9   | <i>Reaktor-Sicherheitskommission und Strahlenschutzkommission: Zeitrahmen für die Beurteilung der Langzeitsicherheit eines Endlagers für radioaktive Abfälle; Techn. Ber. Bonn, 1988.</i>   |
| 10  | <i>International Atomic Energy Agency: Geological Disposal of Radioactive Waste; Techn. Ber. Wien, 2006.</i>  |
| 11  | <i>Kommission Lagerung hoch radioaktiver Abfallstoffe: Abschlussbericht. Der Abschlussbericht ist als Kommissionsdrucksache veröffentlicht (K-Drs. 268). Bezogen über den Deutschen Bundestag 18. Wahlperiode (BT-Drs. 18/9100) vom 05. Juli 2016.</i>  |
| 12  | <i>A. Rübél, I. Müller-Lyda und R. Storck: Die Klassifizierung radioaktiver Abfälle hinsichtlich der Endlagerung; Techn. Ber. Köln; Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, 2004.</i>   |
| 13  | <i>S. Thierfeld und F. Schartmann. Stilllegung und Rückbau kerntechnischer Anlagen - Erfahrungen und Erwartungen; Techn. Ber. Aachen: Brenk Systemplanung GmbH, 2012.</i>   |
| 14  | <i>Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Nukleare Entsorgung &gt; Abfälle; Url: <a href="http://www.bfs.de/DE/themen/ne/abfaelle/bestand/bestand_node.html">http://www.bfs.de/DE/themen/ne/abfaelle/bestand/bestand_node.html</a>; Stichwort: Abfallbestand. Stand: 10.03.2015</i>  |

- 15 Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Nukleare Entsorgung > Abfälle; Url: [http://www.bfs.de/DE/themen/ne/abfaelle/bestand/bestand\\_node.html](http://www.bfs.de/DE/themen/ne/abfaelle/bestand/bestand_node.html); Stichwort: Abfallprognose. Stand: 09.02.2015
- 16 Niedersächsisches Umweltministerium: Planfeststellungsbeschluss für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerks Konrad in Salzgitter als Anlage zur Endlagerung fester oder verfestigter radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung, Hannover, 22. Mai 2002.
- 17 Peter Brennecke, Karin Kugel, Stefan Steyer: Endlager Konrad – Stoffliste, Stand: Oktober 2010; SE-IB-43/10; Bundesamt für Strahlenschutz (Hrsg.); Fachbereich: Sicherheit nuklearer Entsorgung (29. Oktober 2010)
- 18 Peter Brennecke, Karin Kugel, Stefan Steyer: Endlager Konrad – Vorgehensweise zur Umsetzung der wasserrechtlichen Nebenbestimmung; SE-IB-38/09-REV-1; Bundesamt für Strahlenschutz (Hrsg.); Fachbereich: Sicherheit nuklearer Entsorgung (29. Oktober 2010)
- 19 Gesetz zur Ordnung des Wasserhaushaltes, Wasserhaushaltsgesetz – WHG, Ausfertigungsdatum 31.07.2009, geltende Fassung seit dem 1. März 2010
- 20 Stefan Steyer: Produktkontrolle radioaktiver Abfälle, radiologische Aspekte-Schachtanlage Konrad-, Stand: Oktober 2010, Bericht des Bundesamtes für Strahlenschutz; SE-IB-30/08-REV-1, Salzgitter, Oktober 2010.
- 21 Bundesamt für Strahlenschutz (Hrsg.): Schachtanlage Asse II – Gesamtdarstellung zur Rückholungsplanung. BfS-25/14, URN: urn:nbn:de:0221-2014021211169, Stand Januar 2014 im Februar 2014, Salzgitter.
- 22 Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Asse II> Die radioaktiven Abfälle in der Asse II; Url:[http://www.asse.bund.de/Asse/DE/themen/was-ist/radioaktive-abfaelle/radioaktive-abfaelle\\_node.html](http://www.asse.bund.de/Asse/DE/themen/was-ist/radioaktive-abfaelle/radioaktive-abfaelle_node.html); Stichwort: „Was ist die Asse? > Radioaktiver Abfälle“. Stand: 30.09.2015
- 23 GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit: Bestimmung des Inventars an chemischen und chemotoxischen Stoffen in den eingelagerten radioaktiven Abfällen der Schachtanlage Asse. Abschlussbericht für das BMBF und BMU; Autoren: B. Buchheim(Buchheim Engineering) & H. Meyer, M. Tholen (Forschungsbergwerk Asse) März 2004
- 24 Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit: Verzeichnis radioaktiver Abfälle (2013) Bestand zum 31. Dezember 2013 und Prognose; Kommission Lagerung hochradioaktiver Abfallstoffe K-MAT 13
- 25 Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Gemeinsames Übereinkommen über die Sicherheit der Behandlung abgebrannter Brennelemente und über die Sicherheit der Behandlung radioaktiver Abfälle (2012) Bericht der Bundesrepublik Deutschland für die vierte Überprüfungskonferenz im Mai 2012; Referat RS III 3
- Kapitel 2
- 26 EADS SODERN: GENIE 16GT – USER MANUAL, November 2007 France
- 27 Eisenwerke Bassum m.b.H.: Datenblatt zum Abfallbehälter EWDBB-EB1-2-650 Rev.0 Ausführung 2.
- 28 X-5 Monte Carlo Team: MCNP - A General N-Particle Transport Code, Version 5; Volume I Overview and Theory, LA-UR-03-1987 (2003, updated 2005).
- 29 Rubinstein, R. Y., (Hrsg.), David Balding.: Simulation and the Monte Carlo Method; Wiley Series in Probability and Statistics Bd. 707 S,374; John Wiley & Sons. (November 2008)
- 30 Shultis J. K. and Faw R. E.: An MCNP Primer, Dept. of Mechanical and Nuclear Engineering, Kansas State University (2006)
- 31 M. B. Chadwick, M. Herman, P. Oblozinsky, et al.: ENDF/B-VII.1 nuclear data for science and technology: Cross sections, covariances, fission product yields and decay data, Nuclear Data Sheets, 112(12):2887-2996 (2011).

- 32 K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Iwamoto, A. Ichihara, S. Kunieda, S. Chiba, K. Furutaka, N. Otuka, T. Ohsawa, T. Murata, H. Matsunobu, A. Zukeran, S. Kamada, J. Katakura, "JENDL-4.0: A new library for nuclear science and engineering", *J. Nucl. Sci. Technol.*48(2011)1.
- 33 OECD/NEA Data Bank, "The JEFF-3.1.1 Nuclear Data Library", *JEFF Report 22, OECD/NEA Data Bank* (2009).
- 34 Berger MJ, Hubbell JH, Seltzer SM, Chang J, Coursey JS, Sukumar R, Zucker DS, Olsen K (2010) *XCOM: Photon cross section database (version 1.5)*. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD
- 35 Mauerhofer, Havenith, Carascoc, Payanc, Kettler, Mac, Perot: Quantitative comparison between PGNA measurements and MCNP calculations in view of the characterization of radioactive wastes in Germany and France, 24. Seminar Aktivierungsanalyse und Gammaskopie (SAAGAS), Februar 2013, Technischen Universität München
- 36 T. Nicol, E. Mauerhofer, C. Carasco, B. Perot, J. Collot (2016) *HPGe-detector shielding optimization with MCNP for the MEDINA neutron activation cell*. *J Radioanal Nucl Chem*. Doi: 10.1007/s10967-016-4816-3
- 37 T. Nicol, E. Mauerhofer, C. Carasco, B. Perot, J. Collot (2016) *235U and 239Pu characterization in radioactive waste drums using neutron-induced fission delayed gamma rays*. *IEEE (NSS/MIC)* Doi: 10.1109/NSSMIC.2014.7431204
- Kapitel 3
- 38 Molnár GL (2004) *Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis with Neutron Beams*. Kluwer Academic Publishers ISBN 978-1-40201-304-1
- 39 Christoph Genreith: *Partial Neutron Capture Cross Sections of Actinides using Cold Neutron Prompt Gamma Activation Analysis; Reihe Energie & Umwelt – Band 250; Schriften des Forschungszentrum Jülich; ISBN: 978-3-95806-036-4; D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2015)*
- 40 Bode P, Overwater RMW (1993) *Trace-element determinations in very large samples: A new challenge for neutron activation analysis*. *J Radioanal Nucl Chem* 167: 169-176
- 41 Overwater RMW, Bode P, de Goeij JJM, Hoogenboom JE (1996) *Feasibility of elemental analysis of kilogram-size samples by instrumental neutron activation analysis*. *Anal. Chem.* 68:341-348
- 42 Bode P, Overwater RMW, de Goeij JJM (1997) *Large-sample neutron activation analysis: Present status and prospects*. *J Radioanal Nucl Chem* 216: 5-11
- 43 Blaauw M, Lakmaker O, van Aller P (1997) *The accuracy of instrumental neutron activation analysis of kilogram-size inhomogeneous samples*. *Anal. Chem.* 69:2247-2250
- 44 Bode P, Overwater R.M.W., de Goeij JJM (1997) *Large-sample neutron activation analysis: Present status and prospects*. *J Radioanal Nucl Chem* 216: 5-11
- 45 Stamatelatos IE, Tzyka F, Vasilopoulou T, Koster-Ammerlaam MJJ (2010) *Large sample neutron activation analysis of a ceramic vase*. *J Radioanal Nucl Chem* 283:735-740
- 46 Vasilopoulou T, Stamatelatos IE, Montoy EH, Bedregal PS, Tsalafoutas I, Bode P (2015) *Large sample neutron activation analysis of irregular-shaped pottery artifact*. *J Radioanal Nucl Chem* 303:853-858
- 47 Whetstone ZD, Kearfott KJ (2014) *A review of conventional explosives detection using active neutron interrogation*. *J Radioanal Nucl Chem* 301:629-639
- 48 Lim CA (2004) *Recent development in neutron-induced gamma activation for on-line multielemental analysis in industry*. *J Radioanal Nucl Chem* 262:525-532
- 49 Dulloo AR, Ruddy FH, Congedo TV, Gehrke RJ (1998) *Detection limits of a laboratory pulsed gamma neutron activation analysis system for the nondestructive assay of mercury, cadmium and lead*. *Nucl Tech* 123:103-112

- 50 M. Rossbach, E. Mauerhofer (2015) FaNGaS: Fast Neutron Gamma Spectroscopy instrument for prompt gamma signature of inelastic scattering reactions. *Journal of large-scale research facilities*, 1, A32; Doi: <http://dx.doi.org/10.17815/jlsrf-1-54>
- 51 Randriamalala TH, Rossbach M, Mauerhofer E, Révay Zs, Söllradl S, Wagner FM (2016) FaNGaS: A new instrument for  $(n, n\gamma)$  reaction measurements at FRM II. *Nucl Instrum Methods Phys Res A* 806:370-377
- 52 Rossbach M, Randriamalala T, Mauerhofer E, Révay Zs, Söllradl S (2016) Prompt and delayed inelastic scattering reactions from fission neutron irradiation - first results of FaNGaS. *J Radioanal Nucl Chem* 309:149-154
- 53 W. W. Givens, W. R. Mills, R. L. Caldwell (1970): Cyclic Activation Analysis. *Nuclear Instruments and Methods*, Doi 10.1016/0029-554X(70)90302-2
- 54 Jordan KA, Gozani T, Vuljic J (2008) Differential die-away analysis system response modeling and detector design. *Nucl Instrum Methods Phys Res*. Doi: 10.1016/j.nima.2008.02.039
- 55 Givens WW, Mills WR, Caldwell RL (1970) Cyclic activation analysis. *Nucl Instrum Methods* 80:95-103
- 56 Mauerhofer E, Kettler J International Patent Application WO 2012/010162 A1, Australian Patent AU201128018, Chinese Patent ZL201180035866.0, Japanese Patent 2013-519961
- 57 Mauerhofer E, Havenith A, Kettler J (2015) Prompt gamma neutron activation analysis of a 200 L steel drum filled with concrete. *J Radioanal Nucl Chem*. Doi: 10.1007/s10967-016-4768-7
- 58 Beckurts K., Wirtz K. (1964) *Neutron Physics*, Berlin, Doi: 10.1007/978-3-642-87611-1
- 59 Albert Ziegler, Hans-Josef Allelein (Hrsg.): *Reaktortechnik – Physikalisch-technische Grundlagen*. 2. Auflage 2013, ISBN: 978-3-642-33845-8, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 1983,2013.
- 60 Jordan KA, Vuljic J, Gozani T (2007) Remote thermal neutron die-away measurements to improve differential die-away analysis. *Nucl Instrum Methods Phys Res*. Doi: 10.1016/j.nima.2007.04.089
- 61 M.F. L'Annunziata: *Handbook of Radioactivity Analysis*. Third Edition 2012. Elsevier Inc. ISBN: 978-0-12-384873-4
- 62 Yee Ryan M, Timothy Shaw J, Gozani Tsahi (2009) Thermal neutron die-away studies in a 14 MeV neutron-based active interrogation system. *IEEE Trans Nucl Sci*. Doi: 10.1109/TNS.2009.2017373
- 63 D. Reilly, N. Ensslin, H. Smith Jr., S. Kreiner: *Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials*, Los Alamos National Laboratory, United States (1991)
- 64 C. Agarwal, S. Poi, A. Goswami, M. Gathibandhe, R.A. Agrawal: A simple numerical method for gamma-ray self-attenuation correction for samples of common geometries, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 597 page 198–202, 2008.
- 65 Fleming, F.R.: *Neutron Self-Shielding Factors for Simple Geometries*. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* Vol. 33. pp. (1982)
- 66 Richard M. Lindstrom, Ronald F. Fleming.: *Neutron Self-Shielding Factors for Simple Geometries, Revisited (2008)* *Chem. Anal. (Warsaw)*, 53, 855
- 67 A. Trkov, G. Zerovnik, L. Snoj, M. Ravnik: On the self-shielding factors in neutron activation analysis, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 610, page 553–565, 2009.
- 68 M. Abramowitz and I.A. Stegun: *Handbook of Mathematical Functions*. U.S. Govt. Printing Office, Washington, DC, 1964.

- 69 Mildenberger F. & Mauerhofer E. *J Radioanal Nucl Chem* (2016) 307:661. Doi: 10.1007/s10967-015-4178-2

#### Kapitel 5

- 70 Mildenberger F. & Mauerhofer E. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* (2016) 309:1265. Doi: 10.1007/s10967-016-4743-3
- 71 Nicol T, Carasco C., Perot B, Ma JL, Payan E, Mauerhofer M, Havenith A, Collot J (2015) Quantitative comparison between PGNAA measurements and MCNPX simulations. *J Radioanal Nucl Chem.* Doi: 10.1007/s10967-015-4451-4
- 72 Belgya T. (2012) Prompt gamma activation analysis at the Budapest research reactor. *Phys Procedia* 31:99–109
- 73 Systat Software GmbH: *SigmaPlot 11.0 Handbuch.*

#### Kapitel 6

- 74 Mildenberger F., Mauerhofer E. (2016) Cyclic neutron activation analysis of large samples with a pulsed 14 MeV neutron source. *J Radioanal Nucl Chem.* Doi: 10.1007/s10967-016-5098-5
- 75 Erdtmann, G.: *Neutron Activation Tables*, Weinheim, New York, Verlag Chemie, (1976)

#### Kapitel 7

- 76 Thomas Krings: *SGSreco – Radiologische Charakterisierung von Abfallfässern durch Segmentierte  $\gamma$ -Scan Messungen. Reihe Energie & Umwelt – Band 208; Schriften des Forschungszentrum Jülich; ISBN: 978-3-89336-945-4; D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2014)*
- 77 ISO/IEC. (2017). *ISO International Standard ISO/IEC 14882:2014(E) – Programming Language C++*. [Working draft]. Geneva, Switzerland: International Organization for Standardization (ISO). Retrieved from <https://isocpp.org/std/the-standard>
- 78 René Brun, Fons Rademakers (1997) *ROOT – An object oriented data analysis framework, Nuclear Instruments and Methods in Physics, Research A 389 Issues 1-2 Pages 81-86*, Doi: 10.1016/S0168-9002(97)00048-X

#### Kapitel 9

- 79 Estre N, Eck D, Pettier JL, Payan E, Roure C, Simon E (2015) High-energy X-ray Imaging applied to nondestructive characterization of large nuclear waste drums. *IEEE Trans Nucl Sci.* Doi: 10.1109/TNS.2015.2498190
- 80 Carasco C, Perot B, Mariani A, El Kanawati W, Valkovic V, Sudac D, Obhodas J (2010) Material characterization in cemented radioactive waste with the associated particle technique. *Nucl Instrum Methods Phys Res A.* Doi: 10.1016/j.nima.2009.10.085
- 81 Cooper RJ, Radford DC, Hausladen PA, Lagergren K (2011) A novel HPGe-detector for gamma-ray tracking and imaging. *Nucl Instrum Methods Phys Res A.* Doi: 10.1016/j.nima.2011.10.008
- 82 Yee RM, Shaw TJ, Gozani T (2009) Thermal neutron die-away studies in a 14 MeV neutron-based active interrogation system. *IEEE Trans Nucl Sci.* Doi: 10.1109/TNS.2009.2017373
- 83 Nicol T, Mauerhofer E, Carasco C, Perot B, Collot J (2016) HPGe-detector shielding optimization with MCNP for the MEDINA neutron activation cell. *J Radioanal Nucl Chem* Doi: 10.1007/s10967-016-4816-3
- 84 IAEA: *Status of Experimental and Evaluated Discrete  $\gamma$ -Ray Production at E=14,5 MeV. Final Report of Research Contract 7809/RB; IAEA; Wien (1998)*

## ABBILDUNGSVERZEICHNIS

Abbildung 1.1: Klassifizierung radioaktiver Abfälle hinsichtlich ihrer spezifischen Aktivität (blau) bzw. nach ihrer spezifischen Wärmeentwicklung (orange) .....	3
Abbildung 1.2: Abfallbestand für das Jahr 2013 sowie die Abfallprognose für das Jahr 2080 .....	4
Abbildung 1.3: Grenzwerte für ausgewählte wassergefährdende Stoffe gemäß dem PFB des Endlagers Schachanlage Konrad .....	9
Abbildung 1.4: Schematische Darstellung der Anwendung der Deklarations- und Schwellenwertbeschreibung. ....	9
Abbildung 2.1: Die MEDINA-Einrichtung mit ihren wesentlichen Komponenten. Hierzu zählen die Graphitkammer, das $\gamma$ -Spektrometer mit einem HPGe-Detektor, der Neutronengenerator und die Krankonstruktion (Deckel+Traverse). ....	14
Abbildung 2.2: Kontrollraum der MEDINA-Einrichtung mit den Modulen zum Betrieb des Neutronengenerators und zur Aufnahme von $\gamma$ -Spektren. ....	14
Abbildung 2.3: Das 200 l RRW-Stahlfass mit 76 Betonkörpern (links) und mit 76 PE-Zylinder (rechts) befüllt. ....	15
Abbildung 2.4: Asymmetrische Beladung eines 200 l RRW-Stahlfasses mit 60 Beton- und 16 PE-Körpern (links) sowie einer Beladung mit 60 PE- und 16 Beton-Körpern (rechts). ....	18
Abbildung 2.5: Cd-Blech fixiert an einem PE-Körper (links) und an einem Beton-Körper (rechts). ....	19
Abbildung 2.6: Radial- und Höhenposition des Cd-Blechs (rot) innerhalb der PE-Matrix (Probe HP Tabelle 2.3). ....	20
Abbildung 2.7: Horizontaler (links) und vertikaler (rechts) Schnitt durch das MCNP-Modell der MEDINA-Einrichtung. ....	24
Abbildung 2.8: Simulierte thermischen Neutronenflussverteilung ( $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) im Energiebereich von 10-100 meV für ein Fass gefüllt mit Beton-Körpern (Probe HC). ....	26
Abbildung 2.9: Simulierte thermischen Neutronenflussverteilung ( $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) im Energiebereich von 10-100 meV für ein Fass gefüllt mit PE-Körpern (Probe HP). ....	26
Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Prompt- und Verzögerten(delayed)-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (engl.: P&DGNAA). (Eigene Darstellung). ....	27
Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse (CNA) mit einer gepulsten Neutronenquelle. (Die Parameter sind im Text über der Abbildung gegeben.) ....	30
Abbildung 4.1: Schematische Darstellung der Sequenz für die Akquisition der prompten $\gamma$ -Spektren zur Bestimmung der Die-Away Time thermischer Neutronen. ....	41
Abbildung 4.2: $\gamma$ -Spektren der Beton-Probe (Probe HC Tabelle 2.3) im Energiebereich 100-2500 keV für verschiedene Wartezeiten nach Ende der Neutronenpulse. ....	41
Abbildung 4.3: Zeitabhängigkeit der prompten $\gamma$ -Zählrate der ausgewählten Prompt- $\gamma$ -Linien für das leere Bestrahlungskammer (links) und das leere Stahlfasses (rechts). (Log-Lin Darstellung) .....	42
Abbildung 4.4: Zeitabhängigkeit der prompten $\gamma$ -Zählrate der ausgewählten Prompt- $\gamma$ -Linien für die Beton- (links) und die PE-Probe (Probe HC & HP Tabelle 2.3). (Log-Lin Darstellung) .....	42
Abbildung 4.5: Die-Away Time thermischer Neutronen der symmetrischen Proben aus Beton und PE als Funktion der Wasserstoffkonzentration in der Probe. ....	46
Abbildung 5.1: Zählrate der Prompt- $\gamma$ -Linie von $^1\text{H}$ als Funktion des PE-Anteils der symmetrischen Mischproben. Die Linie stellt den linearen Fit der Daten dar. ....	50
Abbildung 5.2: Zählrate der Prompt- $\gamma$ -Linie von $^{28}\text{Si}$ als Funktion des Beton-Anteils der symmetrischen Mischproben. Die Linie stellt den linearen Fit der Daten dar. ....	50
Abbildung 5.3: Detektor-Effizienz $\varepsilon E\gamma$ relevanter $\gamma$ -Linien der Matrizen aus Beton und PE als Funktion der scheinbaren Dichte $\rho_s$ . (Die durchgezogene Linie dient der Trenderkennung.) ....	51
Abbildung 5.4: Experimentelle thermische Neutronenflüsse (ausgefüllte Symbole mit Fehlerbalken) und simulierte thermische Neutronenflüsse (nicht-ausgefüllte Symbole) als Funktion der	

Wasserstoffkonzentration der symmetrischen Proben aus Beton und PE. (Die durchgezogene Linie dient der Trenderkennung.) .....	52
Abbildung 5.5: Verhältnisse zwischen bestimmten und erwarteten Elementmassen mittels einem Box-Whisker Diagramm sowie mittels einer Gauss-Verteilung. Die durchgehenden und gestrichelten roten Linie innerhalb der Box repräsentieren den Median und den arithmetischen Mittelwert. Die runden ausgefüllten Punkte stellen Ausreißer dar.....	54
Abbildung 5.6: Zählraten der $\gamma$ -Linien des Betons und des PEs sowie des Stahlfasses als Funktion des Rotationswinkels für ein asymmetrisches PE-Segment in einer überwiegenden Betonmatrix (Probe B).....	56
Abbildung 5.7: Zählraten der $\gamma$ -Linien des Betons und des PEs sowie des Stahlfasses als Funktion des Rotationswinkels für ein asymmetrisches Beton-Segment in einer überwiegenden PE-Matrix (Probe PE).....	57
Abbildung 6.1: Prompt (schwarz) und verzögert (blau) $\gamma$ -Spektren im Energiebereich 70-2.000 keV für ein 200 l Fass gefüllt mit Beton. Zusätzlich wird das verzögerte $\gamma$ -Spektrum eines leeren 200 l Stahlfasses gezeigt (rot).....	60
Abbildung 6.2: Prompt (schwarz) und verzögert (blau) $\gamma$ -Spektren im Energiebereich 2.000-8.000 keV für ein 200 l Fass gefüllt mit Beton. Zusätzlich wird das verzögerte $\gamma$ -Spektrum eines leeren 200 l Stahlfasses gezeigt (rot).....	61
Abbildung 6.3: Wirkungsquerschnitte der untersuchten Reaktionen mit schnellen Neutronen im Energiebereich von 4 bis 15 MeV.....	63
Abbildung 6.4: Verhältnisse zwischen den thermischen und schnellen Neutronenflüssen im Neutronenpuls in Abhängigkeit des PE-Gehalts bzw. der Wasserstoffkonzentration der Probenmatrix .....	65
Abbildung 6.5: Box-Whisker-Plot der Ergebnisse der Quantifizierung homogener und heterogener Mischproben aus Beton und PE mittels der CNA. Die durchgehenden und gestrichelten Linien innerhalb der Box repräsentieren den Median und den arithmetischen Mittelwert. Die ausgefüllten Punkte stellen Ausreißer dar. ....	68
Abbildung 6.6: Nachweisgrenzen für die symmetrischen Proben aus Beton und PE. (Log-Lin-Darstellung. Die durchgezogenen Hilfslinien dienen der Trenderkennung.) .....	69
Abbildung 7.1: Zählraten der $\gamma$ -Linien von $^1\text{H}$ der Probe, $^{28}\text{Si}$ des Betons und des Untergrunds und $^{56}\text{Fe}$ des Stahlfasses als Funktion des Rotationswinkels. Die Cd-Probe befindet sich bei einem Radialabstand von 28 cm. ....	72
Abbildung 7.2: Zählraten der $^{113}\text{Cd}$ Prompt- $\gamma$ -Linie (558,3 keV) für die Radialabstände 6 cm, 17 cm und 28 cm als Funktion des Rotationswinkels in einem Fass gefüllt mit PE. Bei $0^\circ$ bzw. $-90^\circ$ befindet sich das Cd-Blech unmittelbar vor dem Detektor bzw. unmittelbar vor dem Neutronengenerator.....	72
Abbildung 7.3: Beziehung zwischen der Halben-Auflösung und dem Verhältnis zwischen Radialabstands $r$ einer lokalen Elementmasse und dem Fassradius $R$ für die Matrizen Beton und PE.....	74
Abbildung 7.4: Ablaufdiagramm des Algorithmus zur Lokalisation eines lokal konzentrierten Elements.....	75
Abbildung 7.5: Geometrisches Schema für die Berechnung der Zählratenverteilung anhand von berechneten Punktquellen unter Berücksichtigung des lokalen Neutronenflusses. Hierbei entspricht $d$ dem Abstand vom Fassmantel vor dem Neutronengenerator zur Punktquelle, $q$ der Trajektorie von der Punktquelle zur Detektoroberfläche und $d_0$ dem Abstand vom Fassmittelpunkt zur Detektoroberfläche ( $d_0 = 105\text{cm}$ ).....	77
Abbildung 7.6: Numerisch berechnete (Gleichung 7.5) relative Neutronenflussverteilung für das Fass gefüllt mit Beton (links) und PE (rechts) für 14 MeV Neutronen. Die Schnittebene befindet sich auf der Höhe des Detektors bzw. Neutronengenerators. In dieser Darstellung befindet sich der Neutronengenerator an der Position bei $x=0\text{ cm}$ und $y=30\text{ cm}$ . ....	78
Abbildung 7.7: Mit MCNP simulierte relative Neutronenflussverteilungen im Energiebereich 10-100 meV für das Fass gefüllt mit Beton (links) und PE (rechts). Die Schnittebene befindet sich auf der Höhe des Detektors bzw. Neutronengenerators. In dieser Darstellung befindet sich der Neutronengenerator an der Position bei $x=0\text{ cm}$ und $y=30\text{ cm}$ .....	79

Abbildung 7.8: Vergleich der experimentellen und berechneten Zählraten (normiert) als Funktion des Rotationswinkels für das Cadmium-Blech in der PE-Matrix (Probe HP) bei R=6 cm (links), bei R=17 cm (rechts) und bei R=28 cm (unten).....	79
Abbildung 7.9: Ergebnisse der $\chi^2$ -Minimierung der Lokalisation der Cd-Probe in der Betonmatrix bei R=6 cm (oben), bei R=17 cm (mittig) und bei R=28 cm (unten). Der Fit entspricht einer quadratischen Funktion (Zoom). .....	81
Abbildung 7.10: Ergebnisse der $\chi^2$ -Minimierung der Lokalisation der Cd-Probe in der PE-Matrix (Probe HP) bei R=6 cm (oben), bei R=17 cm (mittig) und bei R=28 cm (unten). Der Fit entspricht einer quadratischen Funktion (Zoom).....	82
Abbildung 7.11: Schematische Darstellung der Berechnung des ortsabhängigen Neutronenflusses im Inneren eines 200 l Stahlfasses. Hierbei ist R der Fassradius, r der Radialabstand des Punkts P vom Fassmittelpunkt aus, l die Wegstrecke von der Fasswand unmittelbar vor dem Neutronengenerator zum Punkt P, $\Phi_P$ der lokale thermische Neutronenfluss und $\Phi_{th}$ der mittlere thermische Neutronenfluss. ....	83
Abbildung 7.12: Zählraten der $\gamma$ -Linien der Isotope des Betons, des PEs und des Cadmiums als Funktion des Rotationswinkels für ein asymmetrisches PE-Segment in einer überwiegenden Betonmatrix (Probe B-Cd-1). Das Cd-Blech befindet sich in dem PE-Segment.....	86
Abbildung 7.13: Zählraten der $\gamma$ -Linien der Isotope des Betons, des PEs und des Cadmiums als Funktion des Rotationswinkels für ein asymmetrisches PE-Segment in einer überwiegenden Betonmatrix (Probe B-Cd-2). Das Cd-Blech befindet sich in der Betonmatrix. ....	86
Abbildung 7.14: Zählraten der $\gamma$ -Linien der Isotope des Betons, des PEs und des Cadmiums als Funktion des Rotationswinkels für ein asymmetrisches Beton-Segment in einer überwiegenden PE-Matrix (Probe PE-Cd-1). Das Cd-Blech befindet sich in der PE-Matrix.....	87
Abbildung 7.15: Zählraten der $\gamma$ -Linien der Isotope des Betons, des PEs und des Cadmiums als Funktion des Rotationswinkels für ein asymmetrisches Beton-Segment in einer überwiegenden PE-Matrix (Probe PE-Cd-2). Das Cd-Blech befindet sich in dem Beton-Segment. ....	87
Abbildung 7.16: Ergebnisse der $\chi^2$ -Minimierung der Lokalisation des Cd-Blechs der Proben B-Cd-1 (links) und B-Cd-2 (rechts). Der Fit entspricht einer quadratischen Funktion (Zoom). ....	90
Abbildung 7.17: Ergebnisse der $\chi^2$ -Minimierung der Lokalisation des Cd-Blechs in den Proben PE-Cd-1 (links) und PE-Cd-2 (rechts). Der Fit entspricht einer quadratischen Funktion (Zoom).....	90
Abbildung 8.1: Schematische Darstellung der Probenanordnung für die lokal konzentrierte Eisenprobe in einem Abfallfass. ....	92
Abbildung 8.2: Zählratenverhältnisse relevanter $\gamma$ -Linien von Eisen als Funktion der Eisenmasse nach Gleichung 7.7 (durchgezogene Linien). ....	94
Abbildung 8.3: Photopeak-Effizienz ausgewählter $^{56}\text{Fe}$ -Linien für die Betonmatrix (links) und für das Stahlfass (rechts) als Funktion des Eisengehalts in der Betonmatrix.....	95
Abbildung 8.4: Neutronen-Selbstabsorptionsfaktor f als Funktion des Eisengehalts in der Betonmatrix. ....	95
Abbildung 8.5: Zählraten ausgewählter $^{56}\text{Fe}$ - $\gamma$ -Linien der Matrix (links) und des Stahlfasses (rechts) als Funktion der Eisenkonzentration in der Betonmatrix. ....	96
Abbildung 8.6: Gesamte Zählrate ausgewählter $^{56}\text{Fe}$ - $\gamma$ -Linien als Funktion des Eisengehalts in der Betonmatrix. ....	96
Abbildung 8.7: Schritte der Methode zur Bestimmung des thermischen Neutronenflusses in einer Betonmatrix mit unbekanntem Eisengehalt. ....	97
Abbildung 8.8: Verhältnisse der berechneten Neutronenflüsse $\Phi_{th, calc}$ zum Referenz-Neutronenfluss $\Phi_{th, Ref}$ ( $3300 \pm 200 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) als Funktion der Eisenkonzentration in der Matrix.....	98
Abbildung 8.9: Berechnete thermische Neutronenflüsse als Funktion der Energie der $^{56}\text{Fe}$ - $\gamma$ -Linien für ausgewählte Eisengehalte in der Betonmatrix. (Die durchgezogenen Linien stellen den Fit der Daten nach Gleichung 8.2 dar.) .....	99
Abbildung 8.10: Verhältnis $a/\Phi_0$ als Funktion des Eisengehalts in der Betonmatrix ( $R^2 = 0,99$ ). Die durchgezogene Linie stellen den Fit der Daten nach Gleichung 8.3 dar. ....	101

---

Abbildung 8.11: Verhältnis zwischen dem berechneten Eisengehalt $\%Fe_{Calc}$ und dem Sollwert des Eisengehalts der Betonmatrix $\%Fe_{Soll}$ als Funktion des Eisengehalts in der Betonmatrix. ....	101
Abbildung 8.12: Verhältnis zwischen dem ermittelten Koeffizienten $\Phi_0$ und dem Produkts des Soll-Neutronenflusses $\Phi_{Soll}$ und der berechneten Neutronen-Selbstabsorptionsfaktoren.....	102
Abbildung 8.13: Photopeak-Effizienz für ausgewählter $^{56}Fe$ $\gamma$ -Linien für das Stahlfass mit Eisen-Inliner (links) und für die Betonmatrix (rechts) als Funktion der Dicke des Eisen-Inliners.....	103
Abbildung 8.14: Verhältnisse der berechneten Zählrate zur Referenz-Zählrate (Fass mit Beton ohne Eisen-Inliner) ausgewählter $^{56}Fe$ $\gamma$ -Linien $Z_{Total}/Z_{Ref}$ als Funktion der Dicke des Eisen-Inliners. ....	104
Abbildung 8.15: Berechnete thermische Neutronenflüsse für ausgewählte Dicken des Eisen-Inliners als Funktion der Energie $^{56}Fe$ - $\gamma$ -Linien. (Die durchgezogenen Linien stellen den Fit der Daten nach Gleichung 8.2 dar.) .....	105
Abbildung 8.16: Verhältnis $\alpha/\Phi_0$ als Funktion der Dicke des Eisen-Inliners $d_{Inliner}$ ( $R_{Fit}^2 = 0,99$ ). (Die durchgezogene Linie stellen den Fit der Daten nach Gleichung 8.4 dar.).....	106
Abbildung 8.17: Verhältnisse zwischen den berechneten Dicken des Eisen-Inliners $d_{Calc}$ und dem Sollwert des Eisen-Inliners $d_{Soll}$ als Funktion der Dicke des Eisen-Inliners $d_{Inliner}$ . ....	106

## TABELLENVERZEICHNIS

<i>Tabelle 2.1: Schematische Darstellung der Proben mit unterschiedlicher radialer Anordnung von Beton- (grau) und PE-Blöcken (schwarz).....</i>	<i>16</i>
<i>Tabelle 2.2: Schematische Darstellung der Proben mit unterschiedlicher axialer Anordnung von Beton- (grau) und PE-Körpern (schwarz).....</i>	<i>17</i>
<i>Tabelle 2.3: Spezifikation der symmetrischen Proben.....</i>	<i>17</i>
<i>Tabelle 2.4: Schematische Darstellung der asymmetrischen Matrixanordnung aus Beton und PE.....</i>	<i>18</i>
<i>Tabelle 2.5: Schematische Darstellung der asymmetrischen Proben aus Beton (grau) und PE (schwarz) mit dem Cd-Blech (rot).....</i>	<i>20</i>
<i>Tabelle 4.1: Entstehungsorte der Prompt-<math>\gamma</math>-Strahlung relevanter Isotope der Probe und der Anlage. (Die in der Tabelle geklammerten Begriffe bedeuten, dass der Anteil der dort produzierten <math>\gamma</math>-Strahlung zweitrangig ist, aufgrund des geringen Massenanteils, aber dennoch bei der Aufnahme des Prompt-<math>\gamma</math>-Spektrums nicht vernachlässigt werden kann.).....</i>	<i>40</i>
<i>Tabelle 4.2: Die-Away Time thermischer Neutronen für die leere Bestrahlungskammer, das leere Stahlfass, die Beton- und die PE-Probe (Probe HC &amp; HP Tabelle 2.3).....</i>	<i>43</i>
<i>Tabelle 4.3: Die-Away Time thermischer Neutronen der Proben Ra1, Ra2 und Ra3.....</i>	<i>45</i>
<i>Tabelle 4.4: Die-Away Time thermischer Neutronen der Proben Ra4, Ra5 und Ra6.....</i>	<i>45</i>
<i>Tabelle 4.5: Die-Away Time thermischer Neutronen der Proben Ax1, Ax2, Ax3 und Ax4.....</i>	<i>45</i>
<i>Tabelle 5.1: Experimentelle und MCNP simulierte Neutronenflüsse sowie deren Verhältnis für die symmetrischen Proben aus Beton und PE.....</i>	<i>53</i>
<i>Tabelle 5.2: Verhältnis zwischen den gemessenen und erwarteten Elementmassen der symmetrischen Proben aus Beton und PE. Für die Elemente Si und Ca wurde der Mittelwert aus den Einzelverhältnissen der jeweiligen <math>\gamma</math>-Linie ermittelt.....</i>	<i>54</i>
<i>Tabelle 5.3: Bestimmte Elementmassen der asymmetrischen Proben B und P mittels gemittelter Zählraten.....</i>	<i>58</i>
<i>Tabelle 6.1: Die-Away Times der Isotope <math>^4\text{H}</math>, <math>^{10}\text{B}</math>, <math>^{28}\text{Si}</math> der Probe und des mittleren Wertes von <math>^{56}\text{Fe}</math> des Stahlfasses.....</i>	<i>64</i>
<i>Tabelle 6.2: <math>\Phi_{th,p}</math> und <math>\Phi_{th,pr}</math> sind die thermischen Neutronenflüsse in der Probe während bzw. nach Beendigung der Neutronenpulse. <math>\Phi_f</math>, <math>d</math> ist der schnelle Neutronenfluss an der Oberfläche des Stahlfasses. <math>\Phi_f</math> ist der schnelle Neutronenfluss in der Probe, berechnet durch den makroskopischen Wirkungsquerschnitt <math>\Sigma</math> für 14 MeV der bekannten Probenzusammensetzung. <math>\Phi_{f,exp}</math> ist der schnelle Neutronenfluss in der Probe, berechnet mittels dem makroskopischen Wirkungsquerschnitt für 14 MeV <math>\Sigma_{exp}</math>, basierend auf den Ergebnissen der PGNAA.....</i>	<i>64</i>
<i>Tabelle 6.3: Elementare Zusammensetzung des Beton, die mittels der CNAА (CNAА Massive Probe) ermittelt wurde, verglichen mit den Ergebnisse der vorherigen PGNAА (PGNAА Massive Probe) sowie mit den Ergebnissen die am Forschungsreaktor in Budapest (PGNAА Kleine Probe) ermittelt wurden.....</i>	<i>66</i>
<i>Tabelle 6.4: Die Verhältnisse der zu erwarteten Mengen der betrachteten Elemente (H, B, O, Na, Al) der gemessenen symmetrischen Mischproben, bestehend aus Beton und PE. Die Bestimmung erfolgte durch die spezifischen prompten <math>\gamma</math>-Linien (p) und durch die spezifischen verzögerten <math>\gamma</math>-Linien (d).....</i>	<i>67</i>
<i>Tabelle 6.5: Die Verhältnisse der zu erwarteten Mengen der betrachteten Elemente (Si, K, Ca, Ti) der gemessenen symmetrischen Mischproben, bestehend aus Beton und PE. Die Bestimmung erfolgte durch die spezifischen prompten <math>\gamma</math>-Linien (p) und durch die spezifischen verzögerten <math>\gamma</math>-Linien (d).....</i>	<i>67</i>
<i>Tabelle 7.1: Ergebnisse der Analysen der Zählraten der Prompt-<math>\gamma</math>-Linie von Cadmium in einer PE-Matrix bei verschiedenen Radialpositionen mittels der modifizierten Gauss-Funktion.....</i>	<i>73</i>
<i>Tabelle 7.2: Ergebnisse der Rekonstruktion der Radialabstände und der Winkelpositionen.....</i>	<i>80</i>
<i>Tabelle 7.3: Ergebnisse der Quantifizierung des Cd-Blechs (135,2 g) in der Beton-Probe und der PE-Probe für verschiedene Radialabstände.....</i>	<i>84</i>

*Tabelle 7.4: Ergebnisse der Quantifizierung der asymmetrischen Proben mittels gemittelter Zählraten der  $\gamma$ -Linien der betrachteten Isotope..... 88*

*Tabelle 7.5: Ergebnisse der Rekonstruktion des Radialabstandes (17 cm) und der Winkelposition des Cd-Blechs in asymmetrischen Proben aus Beton und PE. Die fehlerhaft ermittelten Winkelpositionen sind rot markiert. .... 89*

*Tabelle 7.6: Ergebnisse der Quantifizierung der Cd-Masse ( $m=135,2$  g) in asymmetrischen Proben aus Beton und PE. .... 89*

*Tabelle 8.1: Zählratenverhältnisse relevanter Prompt- $\gamma$ -Linien als Funktion der Eisenprobendicke. Die Ergebnisse aus den MCNP-Simulationen sind normiert zur Probe „Nur Beton“..... 93*

*Tabelle 8.2: Koeffizienten der Fits (Gleichung 8.2) für verschiedene Eisengehalte in der Betonmatrix..... 100*

*Tabelle 8.3: Koeffizienten des Fits (Gleichung 8.2) für verschiedene Dicken des Eisen-Inliners..... 105*

## ANHANG

### A01 – MCNP-Simulation symmetrischer Proben aus Beton und PE

Die Abbildungen zeigen die simulierte thermischen Neutronenflussverteilungen ( $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) im Energiebereich von 10-100 meV für den horizontalen (links) und vertikalen (rechts) Querschnitt durch das Probenfass. Die Probenkonfigurationen sind in Tabelle 2.1, Tabelle 2.2 und Tabelle 2.3 gegeben.

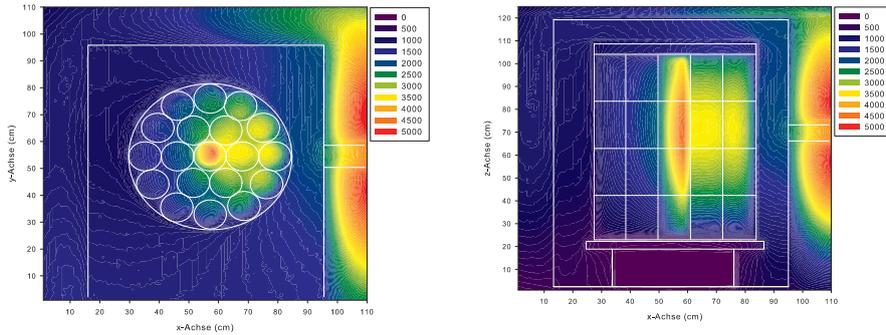


Abbildung A02.1: Probe Ra1

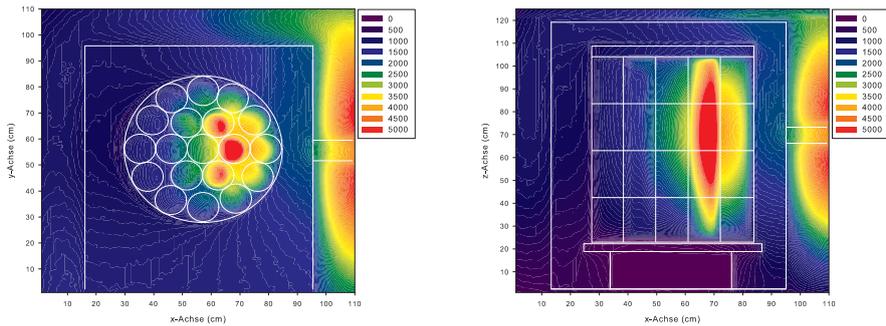


Abbildung A02.2: Probe Ra2

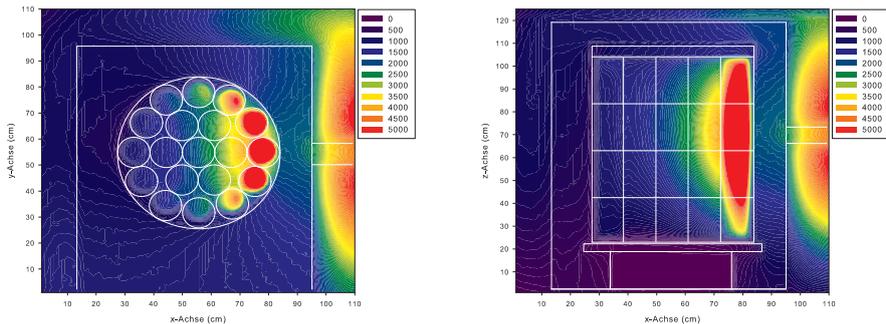


Abbildung A02.3: Probe Ra3

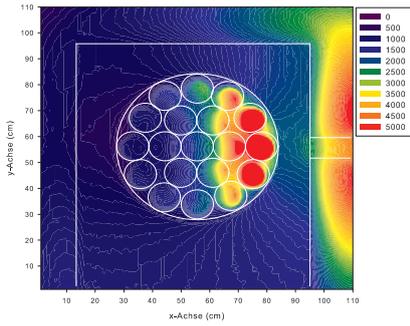


Abbildung A02.4: Probe Ra4

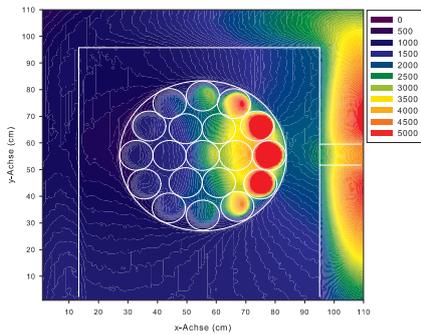
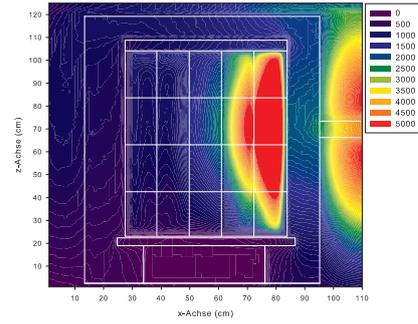


Abbildung A02.5: Probe Ra5

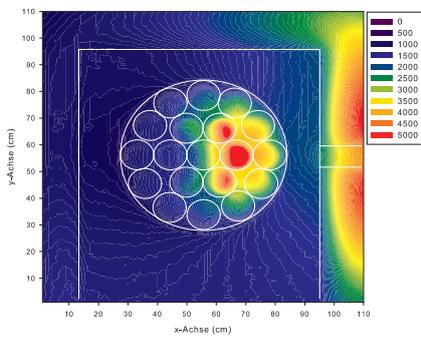
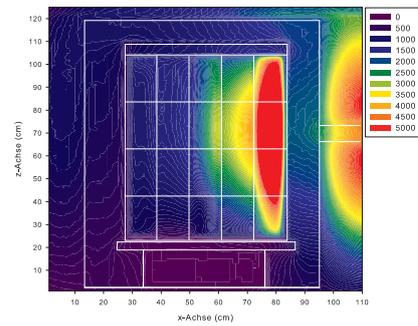
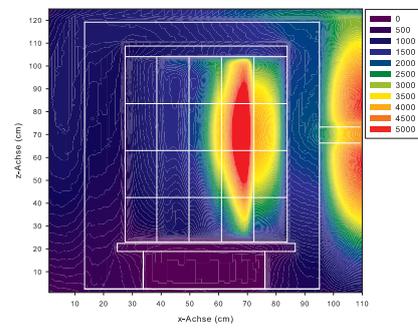


Abbildung A02.6: Probe Ra6



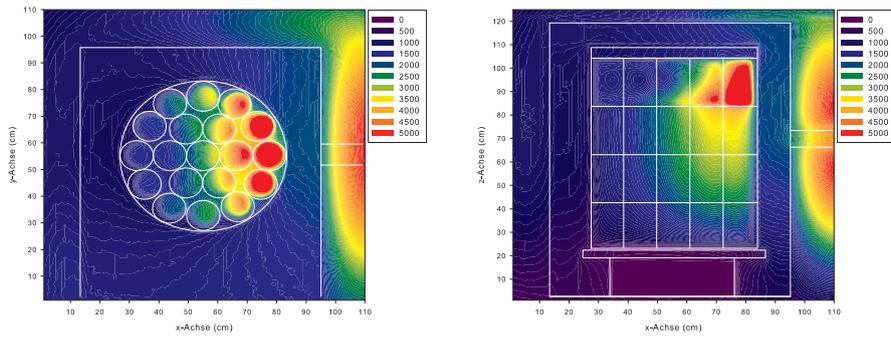


Abbildung A02.7: Probe Ax1

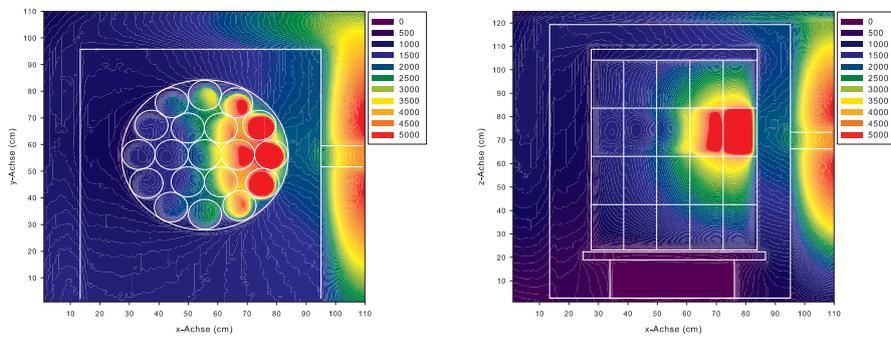


Abbildung A02.8: Probe Ax2

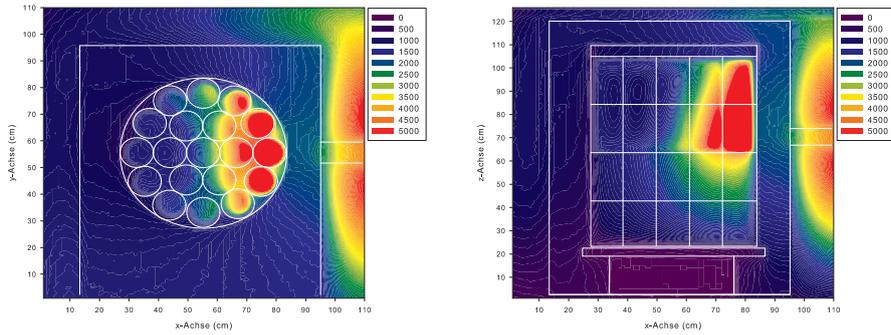


Abbildung A02.9: Probe Ax3

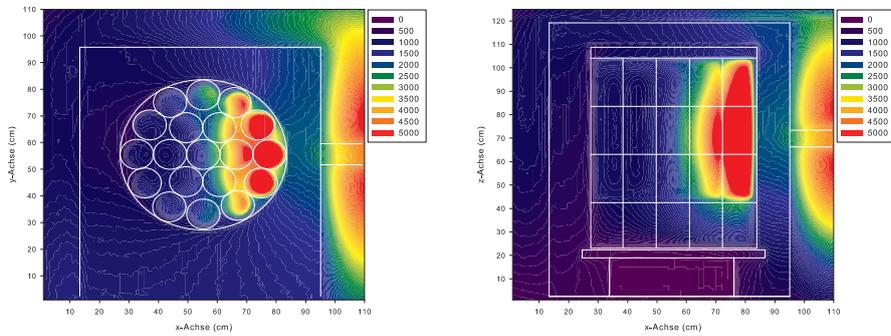


Abbildung A02.10: Probe Ax4

## A02 - Reaktionen für den Nachweis von Elementen mittels CNA

Tabelle A01.1: Relevante Reaktionen für den Nachweis von Elementen mittels der CNA (Teil 1).

Isotop	Häufigkeit (%)	Reaktion 14,5 MeV <sup>75 84</sup>	$\sigma_{14,5\text{MeV}}$ (mb)	HWZ	Reaktion 25 meV <sup>31</sup>	$\sigma_{25\text{meV}}$ (mb)
<sup>1</sup> H	99,99	-	-	-	<sup>1</sup> H(n, $\gamma$ ) <sup>2</sup> H	332,6(8)
<sup>6</sup> Li	7,59	<sup>6</sup> Li(n,p) <sup>6</sup> He	8,3(2)	802 ms	<sup>6</sup> Li(n,t) <sup>4</sup> He	940(25)b
<sup>7</sup> Li	92,41	-	-	-	<sup>7</sup> Li(n, $\gamma$ ) <sup>8</sup> Li	45,4(6)
<sup>9</sup> Be	100	<sup>9</sup> Be(n, $\alpha$ ) <sup>6</sup> He	10(1)	802 ms	<sup>9</sup> Be(n, $\gamma$ ) <sup>10</sup> Be	8,49(8)
<sup>10</sup> B	19,9	<sup>10</sup> B(n,p) <sup>10</sup> Be	9(1)	19,3 s	<sup>10</sup> B(n, $\alpha$ ) <sup>7</sup> Li	3837(11)
<sup>12</sup> C	98,93	<sup>12</sup> C(n,p) <sup>12</sup> B	1,93(2)	20,3 ms	<sup>12</sup> C(n, $\gamma$ ) <sup>13</sup> C	3,86(5)
<sup>14</sup> N	99,63	<sup>14</sup> N(n,2n) <sup>13</sup> N	7,4(3)	9,965 m	<sup>14</sup> N(n, $\gamma$ ) <sup>15</sup> N	79,5(6)
<sup>14</sup> N	99,63	-	-	-	<sup>14</sup> N(n,p) <sup>15</sup> N	1820(23)
<sup>16</sup> O	99,63	<sup>16</sup> O(n,p) <sup>16</sup> N	5,9(4)	7,13 s	<sup>16</sup> O(n, $\gamma$ ) <sup>17</sup> O	0,190(11)
<sup>19</sup> F	100	<sup>19</sup> F(n,p) <sup>19</sup> N	19(2)	26,9 s	<sup>19</sup> F(n, $\gamma$ ) <sup>20</sup> F	9,6(9)
<sup>23</sup> Na	100	<sup>23</sup> Na(n, $\gamma$ ) <sup>24</sup> Na	0,23(1)	14,95 h	<sup>23</sup> Na(n, $\gamma$ ) <sup>24</sup> Na	531,4(9)
<sup>26</sup> Mg	11,01	<sup>26</sup> Mg(n, $\gamma$ ) <sup>27</sup> Mg	0,2(1)	9,46 m	<sup>26</sup> Mg(n, $\gamma$ ) <sup>27</sup> Mg	38,31(13)
<sup>27</sup> Al	100	<sup>27</sup> Al(n, $\alpha$ ) <sup>24</sup> Al	56(4)	14,95 h	<sup>27</sup> Al(n, $\gamma$ ) <sup>28</sup> Al	231(11)
<sup>27</sup> Al	100	<sup>27</sup> Al(n, $\gamma$ ) <sup>28</sup> Al	0,65(3)	2,24 m	-	-
<sup>27</sup> Al	100	<sup>27</sup> Al(n,p) <sup>27</sup> Mg	31(2)	9,46 m	-	-
<sup>28</sup> Si	92,22	<sup>28</sup> Si(n,p) <sup>28</sup> Al	230(3)	2,25 m	<sup>28</sup> Si(n, $\gamma$ ) <sup>29</sup> Si	169,1(5)
<sup>30</sup> Si	3,09	<sup>30</sup> Si(n, $\gamma$ ) <sup>31</sup> Si	0,6(1)	157 m	<sup>30</sup> Si(n, $\gamma$ ) <sup>31</sup> Si	107,1(8)
<sup>31</sup> P	100	<sup>31</sup> P(n, $\alpha$ ) <sup>28</sup> Al	118(4)	2,256 m	<sup>31</sup> P(n, $\gamma$ ) <sup>32</sup> P	166,2(5=)
<sup>32</sup> S	95,02	<sup>32</sup> S(n,p) <sup>32</sup> P	225(7)	14,28 d	<sup>32</sup> S(n, $\gamma$ ) <sup>33</sup> S	528,2(8)
<sup>34</sup> S	4,21	<sup>34</sup> S(n,p) <sup>34</sup> P	75(4)	12,4 s	<sup>34</sup> S(n, $\gamma$ ) <sup>35</sup> S	223,6(9)
<sup>35</sup> Cl	75,77	<sup>35</sup> Cl(n, $\alpha$ ) <sup>34</sup> P	112(5)	12,4 s	<sup>35</sup> Cl(n, $\gamma$ ) <sup>36</sup> Cl	43600(20)
<sup>39</sup> K	93,26	<sup>39</sup> K(n,2n) <sup>38</sup> K	3,5(3)	7,63 m	<sup>39</sup> K(n, $\gamma$ ) <sup>40</sup> K	2098(14)
<sup>41</sup> K	6,73	<sup>41</sup> K(n, $\alpha$ ) <sup>38</sup> Cl	112(4)	37,2 m	<sup>41</sup> K(n, $\gamma$ ) <sup>42</sup> K	1459(11)
<sup>41</sup> K	6,73	<sup>41</sup> K(n, $\gamma$ ) <sup>42</sup> K	3,5(3)	12,32 h	-	-
<sup>40</sup> Ca	96,94	<sup>40</sup> Ca(n,2n) <sup>39</sup> Ca	10(2)	870 ms	<sup>40</sup> Ca(n, $\gamma$ ) <sup>41</sup> Ca	408(5)
<sup>45</sup> Sc	100	<sup>45</sup> Sc(n, $\alpha$ ) <sup>42</sup> K	44(2)	12,3 h	<sup>45</sup> Sc(n, $\gamma$ ) <sup>46</sup> Sc	27140(15)
<sup>48</sup> Ti	73,72	<sup>48</sup> Ti(n,p) <sup>48</sup> Sc	60(3)	43,7 h	<sup>48</sup> Ti(n, $\gamma$ ) <sup>49</sup> Ti	8328(13)
<sup>50</sup> Ti	5,18	<sup>50</sup> Ti(n, $\gamma$ ) <sup>51</sup> Ti	3,5(7)	5,76 m	<sup>50</sup> Ti(n, $\gamma$ ) <sup>51</sup> Ti	179,5(9)
<sup>50</sup> Ti	5,18	<sup>50</sup> Ti(n,p) <sup>50</sup> Sc	28(5)	102,5 s	-	-
<sup>51</sup> V	99,75	<sup>51</sup> V(n, $\alpha$ ) <sup>48</sup> Sc	15(5)	43,7 h	<sup>51</sup> V(n, $\gamma$ ) <sup>52</sup> V	4919(21)
<sup>51</sup> V	99,75	<sup>51</sup> V(n,p) <sup>51</sup> Ti	29(4)	5,76 m	-	-
<sup>50</sup> Cr	4,34	<sup>50</sup> Cr(n,2n) <sup>49</sup> Cr	20(3)	42,3 m	<sup>50</sup> Cr(n, $\gamma$ ) <sup>51</sup> Cr	15380(17)
<sup>50</sup> Cr	4,34	<sup>50</sup> Cr(n, $\gamma$ ) <sup>51</sup> Cr	1,3(4)	46,2 m	-	-
<sup>52</sup> Cr	83,79	<sup>52</sup> Cr(n,2n) <sup>51</sup> Cr	350(4)	46,2 m	<sup>52</sup> Cr(n, $\gamma$ ) <sup>53</sup> Cr	856,1(9)
<sup>53</sup> Cr	9,50	<sup>53</sup> Cr(n,p) <sup>53</sup> V	4,01(5)	1,55 m	<sup>53</sup> Cr(n, $\gamma$ ) <sup>54</sup> Cr	18410(21)
<sup>55</sup> Mn	100	<sup>55</sup> Mn(n, $\alpha$ ) <sup>52</sup> V	29(8)	3,74 m	<sup>55</sup> Mn(n, $\gamma$ ) <sup>56</sup> Mn	13280(23)
<sup>55</sup> Mn	100	<sup>55</sup> Mn(n, $\gamma$ ) <sup>56</sup> Mn	0,65(7)	2,58 h	-	-
<sup>54</sup> Fe	5,84	<sup>54</sup> Fe(n,2n) <sup>53</sup> Fe	18(5)	8,51 m	<sup>54</sup> Fe(n, $\gamma$ ) <sup>55</sup> Fe	2252(12)
<sup>56</sup> Fe	91,72	<sup>56</sup> Fe(n, $\alpha$ ) <sup>55</sup> Cr	21,5(9)	3,56 m	<sup>56</sup> Fe(n, $\gamma$ ) <sup>57</sup> Fe	2591(13)
<sup>56</sup> Fe	91,72	<sup>56</sup> Fe(n,p) <sup>56</sup> Mn	103(4)	2,583 h	-	-

<sup>84</sup> IAEA: Status of Experimental and Evaluated Discrete  $\gamma$ -Ray Production at E=14,5 MeV. Final Report of Research Contract 7809/RB; IAEA; Wien(1998)

Tabelle A01.2: Relevante Reaktionen für den Nachweis von Elementen mittels der CNA A (Teil 2).

Isotop	Häufigkeit (%)	Reaktion 14,5 MeV <sup>75</sup> 84	$\sigma_{14,5\text{MeV}}$ (mb)	HWZ	Reaktion 25 meV <sup>31</sup>	$\sigma_{25\text{meV}}$ (mb)
<sup>111</sup> Cd	12,80	<sup>111</sup> Cd(n,n' $\gamma$ ) <sup>111m</sup> Cd	-	48,5 m	<sup>111</sup> Cd(n, $\gamma$ ) <sup>112</sup> Cd	7133(26)
<sup>113</sup> Cd	12,22	<sup>113</sup> Cd(n,n' $\gamma$ ) <sup>113m</sup> Cd	-	14,1 y	<sup>113</sup> Cd(n, $\gamma$ ) <sup>114</sup> Cd	20,17(24)kb
<sup>139</sup> La	99,91	<sup>139</sup> La(n, $\alpha$ ) <sup>138</sup> Cs	1,9(4)	33,4 m	-	-
<sup>139</sup> La	99,91	<sup>139</sup> La(n, $\gamma$ ) <sup>140</sup> La	0,96(7)	1,68 d	-	-
<sup>142</sup> Ce	11,11	<sup>142</sup> Ce(n, $\gamma$ ) <sup>143</sup> Ce	1,8(6)	33,0 h	-	-
<sup>151</sup> Eu	47,81	<sup>151</sup> Eu(n, $\gamma$ ) <sup>152m</sup> Eu	9,6(4)	9,31 h	-	-
<sup>151</sup> Eu	47,81	<sup>151</sup> Eu(n, $\gamma$ ) <sup>152m</sup> Eu	9,6(5)	96 m	-	-
<sup>151</sup> Eu	47,81	<sup>151</sup> Eu(n,n' $\gamma$ ) <sup>151m</sup> Eu	-	58,9 $\mu$ s	-	-
<sup>153</sup> Eu	52,19	<sup>153</sup> Eu(n,2n) <sup>152m</sup> Eu	733(4)	9,31 h	-	-
<sup>153</sup> Eu	52,19	<sup>153</sup> Eu(n,2n) <sup>152m</sup> Eu	733(4)	96 m	-	-
<sup>159</sup> Tb	100	<sup>159</sup> Tb(n,p) <sup>159</sup> Gd	2,2(6)	18,5 h	-	-
<sup>165</sup> Ho	100	<sup>165</sup> Ho(n, $\gamma$ ) <sup>166</sup> Ho	1,2(4)	26,8 h	-	-
<sup>167</sup> Er	22,93	<sup>167</sup> Er(n,n' $\gamma$ ) <sup>167m</sup> Er	-	2,27 s	-	-
<sup>176</sup> Lu	2,59	<sup>176</sup> Lu(n,n' $\gamma$ ) <sup>176m</sup> Lu	5,8(4)	3,66 h	-	-
<sup>178</sup> Hf	27,28	<sup>178</sup> Hf(n,n' $\gamma$ ) <sup>178m</sup> Hf	-	4,0 s	-	-
<sup>179</sup> Hf	13,63	<sup>179</sup> Hf(n,n' $\gamma$ ) <sup>179m</sup> Hf	-	18,7 s	-	-
<sup>180</sup> Hf	35,08	<sup>180</sup> Hf(n,n' $\gamma$ ) <sup>180m</sup> Hf	12,4(5)	5,47 h	-	-
<sup>180</sup> Ta	0,012	<sup>180</sup> Ta(n,n' $\gamma$ ) <sup>180m</sup> Ta	3,3(7)	8,15 h	-	-
<sup>191</sup> Ir	37,3	<sup>191</sup> Ir(n,n' $\gamma$ ) <sup>190m</sup> Ir	647(5)	3,09 h	<sup>191</sup> Ir(n, $\gamma$ ) <sup>192</sup> Ir	425(50)b
<sup>191</sup> Ir	37,3	<sup>191</sup> Ir(n,2n) <sup>190m</sup> Ir	866(8)	1,12 h	-	-
<sup>191</sup> Ir	37,3	<sup>191</sup> Ir(n, $\gamma$ ) <sup>192m</sup> Ir	1,0(3)	1,45 m	-	-
<sup>191</sup> Ir	37,3	<sup>191</sup> Ir(n,n' $\gamma$ ) <sup>191m</sup> Ir	117(4)	4,94 s	-	-
<sup>193</sup> Ir	62,7	<sup>193</sup> Ir(n,2n) <sup>192m</sup> Ir	397(5)	1,45 m	-	-
<sup>193</sup> Ir	62,7	<sup>193</sup> Ir(n, $\gamma$ ) <sup>194</sup> Ir	4,0(4)	19,3 h	-	-
<sup>193</sup> Ir	62,7	<sup>193</sup> Ir(n,n' $\gamma$ ) <sup>193m</sup> Ir	159(6)	10,5 d	-	-
<sup>195</sup> Pt	33,78	<sup>195</sup> Pt(n,p) <sup>195</sup> Ir	2,9(5)	3,8 h	<sup>195</sup> Pt(n, $\gamma$ ) <sup>196</sup> Pt	8750(15)
<sup>198</sup> Pt	7,16	<sup>198</sup> Pt(n, $\gamma$ ) <sup>199</sup> Pt	1,7(5)	30,8 m	-	-
<sup>203</sup> Tl	29,52	<sup>203</sup> Tl(n,2n) <sup>202</sup> Tl	1300(30)	12,2 d	-	-
<sup>203</sup> Tl	29,52	<sup>203</sup> Tl(n, $\alpha$ ) <sup>200</sup> Au	0,37(5)	48,4 m	-	-
<sup>205</sup> Tl	70,48	<sup>205</sup> Tl(n, $\alpha$ ) <sup>202</sup> Au	0,75(2)	28,8 s	-	-
<sup>205</sup> Tl	70,48	<sup>205</sup> Tl(n, $\gamma$ ) <sup>206</sup> Tl	2,0(4)	4,2 m	-	-
<sup>204</sup> Pb	1,4	<sup>204</sup> Pb(n,n' $\gamma$ ) <sup>205m</sup> Pb	-	1,14 h	<sup>204</sup> Pb(n, $\gamma$ ) <sup>205</sup> Pb	703,2(8)
<sup>204</sup> Pb	1,4	<sup>204</sup> Pb(n,2n) <sup>203m</sup> Pb	1200(19)	6,2 s	-	-
<sup>206</sup> Pb	24,1	<sup>206</sup> Pb(n,2n) <sup>205m</sup> Pb	1100(18)	5,1 ms	<sup>206</sup> Pb(n, $\gamma$ ) <sup>207</sup> Pb	26,56(12)
<sup>207</sup> Pb	22,1	<sup>207</sup> Pb(n,n' $\gamma$ ) <sup>207m</sup> Pb	-	800 ms	<sup>207</sup> Pb(n, $\gamma$ ) <sup>208</sup> Pb	620,1(8)
<sup>208</sup> Pb	52,4	<sup>208</sup> Pb(n,2n) <sup>207m</sup> Pb	1630(20)	800 ms	<sup>208</sup> Pb(n, $\gamma$ ) <sup>209</sup> Pb	0,230(11)
<sup>209</sup> Bi	100	<sup>209</sup> Bi(n, $\gamma$ ) <sup>210</sup> Bi	0,33(5)	5,01 d	<sup>209</sup> Bi(n, $\gamma$ ) <sup>210</sup> Bi	34,21(19)

## A03 – Zählraten symmetrischer Proben

Tabelle A03.1: Zählrate  $Z_{E_\gamma}$  der prompten  $\gamma$ -Linien der Isotope der symmetrischen Proben.

Proben- bezeichnung	$Z_{H-1}$ ( $s^{-1}$ ) 2223,2 keV	$Z_{B-10}$ ( $s^{-1}$ ) 477,6 keV	$Z_{Si-28}$ ( $s^{-1}$ ) 3538,9 keV	$Z_{K-39}$ ( $s^{-1}$ ) 770,3 keV	$Z_{Ca-40}$ ( $s^{-1}$ ) 1942,7 keV	$Z_{Ti-48}$ ( $s^{-1}$ ) 1381,7 keV
HC	45,1(0,9)	95(15)	6,8(0,4)	4,0(0,2)	23,7(1,4)	6,2(0,4)
HP	330(4)	-	-	-	-	-
Ra1	91,7(2,2)	97(13)	7,3(0,3)	4,7(0,4)	23,1(0,7)	5,4(0,4)
Ra2	105(2,2)	69(10)	6,0(0,3)	3,6(0,3)	17,0(0,5)	5,5(0,3)
Ra3	223(4)	30(5)	3,0(0,2)	2,0(0,3)	8,8(0,4)	2,0(0,2)
Ra4	296(6)	3,5(0,7)	0,55(0,03)	0,39(0,06)	1,3(0,2)	2,4(0,2)
Ra5	231(6)	26(4)	2,8(0,2)	1,4(0,1)	10,5(0,3)	3,7(0,3)
Ra6	110(2)	69(10)	4,6(0,4)	3,9(0,3)	16,9(0,6)	4,6(0,3)
Aa1	121(3)	96(13)	5,0(0,3)	4,2(0,3)	18,8(0,5)	7,5(0,5)
Aa2	110(2)	69(10)	4,6(0,4)	3,9(0,3)	16,9(0,6)	4,6(0,3)
Ax3	157(3)	39(8)	3,0(0,2)	2,3(0,3)	9,7(0,9)	4,1(0,4)
Ax4	208(4)	23(5)	1,4(0,1)	1,3(0,2)	5,3(0,5)	3,1(0,3)

## DANKSAGUNG

*Bei meinem Doktorvater Herrn Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Dirk Bosbach möchte ich mich für die Möglichkeit diese Doktorarbeit anzufertigen und für seine Unterstützung in den verschiedensten Phasen der Arbeit bedanken.*

*Bei Herrn Univ.-Prof. (i.R.) Dr. rer. nat. Bruno Thomauske möchte ich mich für die Übernahme der Zweitbegutachtung und für die konstruktiven Diskussionen zu dieser Arbeit bedanken.*

*Bei Herrn Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Georg Roth möchte ich mich ganz herzlich für die Übernahme des Vorsitzes der Prüfungskommission bedanken.*

*Einen ganz besonderen Dank möchte ich Herrn Dr. Eric Mauerhofer für die exzellente fachliche Betreuung und für unzählige Anregungen sowie hilfreiche Diskussionen zu dieser Arbeit zukommen lassen.*

*Des Weiteren möchte ich Herrn Manuel Schumann M. Sc. für die zahlreichen Anregungen, in Zusammenhang mit der Implementierung des ROOT-Packages in das C++ Modell, danken. Zudem möchte ich Herrn Dr. Matthias Rossbach, Herrn Dr. Tsito Randriamalala, Herrn Dr. Tangi Nicol und Herrn Dr. Christoph Genreith für die gehaltvollen, fachlichen Diskussionen danken.*

*Den wohl größten Dank schulde ich meiner Familie. Meinen Eltern möchte ich von tiefstem Herzen dafür danken, dass sie mich immer bei meinen Entscheidungen unterstützt haben. Meiner Freundin Laura gilt zudem ein ganz besonderer Dank.*



Band / Volume 382

**Charakterisierung gradiertter Eisen/Wolfram-Schichten  
für die erste Wand von Fusionsreaktoren**

S. Heuer (2017), x, 234 pp

ISBN: 978-3-95806-252-8

Band / Volume 383

**High resolution imaging and modeling of aquifer structure**

N. Güting (2017), viii, 107 pp

ISBN: 978-3-95806-253-5

Band / Volume 384

**IEK-3 Report 2017**

Sektorkopplung –

Forschung für ein integriertes Energiesystem

(2017), 182 pp

ISBN: 978-3-95806-256-6

Band / Volume 385

**Bestimmung der Wolframerosion mittels optischer Spektroskopie  
unter ITER-relevanten Plasmabedingungen**

M. Laengner (2017), vi, 184, XI pp

ISBN: 978-3-95806-257-3

Band / Volume 386

**IEK-3 Report 2017**

Sector Coupling –

Research for an Integrated Energy System

(2017), 175 pp

ISBN: 978-3-95806-258-0

Band / Volume 387

**Photochemistry of Highly Oxidized Multifunctional Organic Molecules:  
a Chamber Study**

L. I. M. Pullinen (2017), II, 96, xviii pp

ISBN: 978-3-95806-260-3

Band / Volume 388

**Poröse Transportschichten für die Polymerelektrolytmembran-  
Wasserelektrolyse**

M. Höh (2017), VI, 186 pp

ISBN: 978-3-95806-262-7

Band / Volume 389

**Modelling of High Temperature Polymer Electrolyte Fuel Cells**

Q. Cao (2017), 173 pp

ISBN: 978-3-95806-263-4

Band / Volume 390

**Potential use of nitrification inhibitors for mitigating N<sub>2</sub>O emission from soils**

D. Wu (2017), 206 pp

ISBN: 978-3-95806-264-1

Band / Volume 391

**Mechanical Characterization of Solid Oxide Fuel Cells and Sealants**

J. Wei (2017), II, 151 pp

ISBN: 978-3-95806-266-5

Band / Volume 392

**Microcrystalline Silicon Carbide for Silicon Heterojunction Solar Cells**

M. B. Pomaska (2017), 150 pp

ISBN: 978-3-95806-267-2

Band / Volume 393

**Einfluss der Kristallisation auf das Fließverhalten oxidischer Schmelzen**

S. Seebold (2017), 168 pp

ISBN: 978-3-95806-268-9

Band / Volume 394

**Water vapour in the UTLS – Climatologies and Transport**

P. R. Neis (2017), x, 124 pp

ISBN: 978-3-95806-269-6

Band / Volume 395

**Neutronenaktivierungsanalyse mit gepulsten 14 MeV Neutronen zur Charakterisierung heterogener radioaktiver Abfälle**

F. Mildenerger (2017), vi, 128 pp

ISBN: 978-3-95806-271-9

Weitere **Schriften des Verlags im Forschungszentrum Jülich** unter  
<http://www.zb1.fz-juelich.de/verlagextern1/index.asp>



**Energie & Umwelt /  
Energy & Environment  
Band / Volume 395  
ISBN 978-3-95806-271-9**

