Energie & Umwelt
Energy & Environment

248

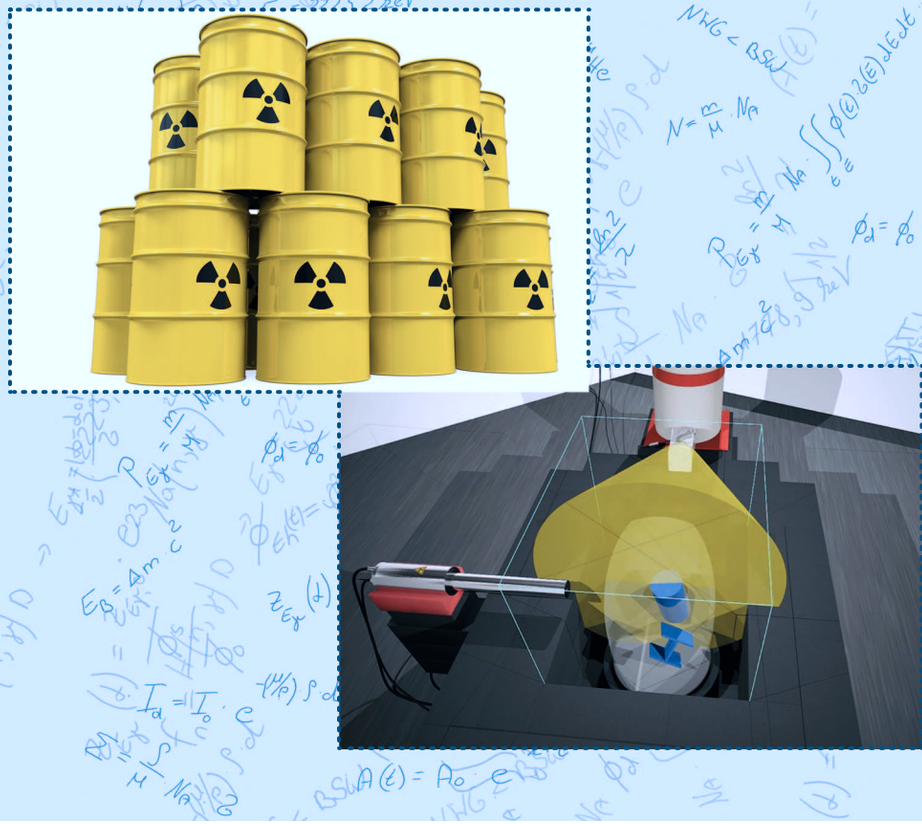
Charakterisierung radioaktiver Abfallprodukte

Andreas Wilhelm Havenith

Mitglied der Helmholtz-Gemeinschaft

Stoffliche Charakterisierung radioaktiver Abfallprodukte durch ein Multi-Element-Analyseverfahren basierend auf der instrumentellen Neutronen-Aktivierungs-Analyse – MEDINA –

Andreas Wilhelm Havenith



Energie & Umwelt /
Energy & Environment
Band / Volume 248
ISBN 978-3-95806-033-3

JÜLICH
FORSCHUNGSZENTRUM

Energie & Umwelt /
Energy & Environment
Band / Volume 248
ISBN 978-3-95806-033-3

JÜLICH
FORSCHUNGSZENTRUM

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment Band / Volume 248

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

Stoffliche Charakterisierung radioaktiver Abfallprodukte durch ein Multi-Element-Analyse-verfahren basierend auf der instrumentellen Neutronen-Aktivierungs-Analyse – MEDINA –

Andreas Wilhelm Havenith

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment — Band / Volume 248

ISSN 1866-1793 — ISBN 978-3-95806-033-3

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
www.fz-juelich.de/zb

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Bildquelle Titelseite: Bild oben: © nerthuz / Fotolia.com

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2015

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band / Volume 248

D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2014)

ISSN 1866-1793
ISBN 978-3-95806-033-3

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

Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil des Werkes darf in irgendeiner Form (Druck, Fotokopie oder in einem anderen Verfahren) ohne schriftliche Genehmigung des Verlages reproduziert oder unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden.

Geistige und rhetorische Größe besteht darin, die Dinge auf das Wesentliche zu konzentrieren;
Fachkompetenz zeichnet sich dadurch aus, komplexe Zusammenhänge bis ins Detail zu verstehen und erklären zu können;
strategisches Denken manifestiert sich darin, Reaktionen abzuwägen und bei der Entscheidungsfindung zu berücksichtigen.

Andreas W. Havenith

Danksagung

Ich möchte mich bei den Menschen, die mich während meiner Arbeit in den letzten Jahren begleitet und unterstützt haben, bedanken. Zunächst möchte ich meine Eltern nennen, wobei ich besonders meinem Vater Dietmar Havenith, der die Arbeit auch als Lektor gelesen hat, für die vielen kritischen Diskussionen danken möchte. Unsere Gespräche, sei es über Energiepolitik, Wirtschaft oder Philosophie haben mich schon früh geprägt.

Für die Einführung in die Kernstrahlungsmesstechnik und die enge fachliche Zusammenarbeit gilt mein großer Dank Dr. Eric Mauerhofer, meinem Betreuer während der Doktorarbeit seitens des Forschungszentrums Jülich. Die von ihm geforderte Präzision und logische Struktur für Experimente und wissenschaftliches Schreiben haben mir geholfen, mich weiter zu entwickeln. Ich möchte mich ebenfalls bei Dr. John Kettler für die Zusammenarbeit und Kollegialität bedanken. Mit ihm habe ich in den letzten drei Jahren parallel zu den wissenschaftlichen Arbeiten ein Unternehmen im Bereich der kerntechnischen Aus- und Fortbildung aufgebaut.

Zuletzt gilt mein ganz besonderer Dank meinem Doktorvater Prof. Dr. Bruno Thomauske, der meine Dissertation seitens der RWTH Aachen von Anfang an unterstützt hat. Herr Thomauske hat durch seine Art, die Dinge sehr kritisch zu hinterfragen und aus einem unkonventionellen Blickwinkel zu betrachten, mir immer wieder neue und zielführende Denkanstöße gegeben. Zudem hat er mir die notwendige Freiheit eingeräumt, ohne geistige oder formale Schranken wissenschaftlich zu arbeiten.

Zum Abschluss möchte ich mich bei den Mitarbeitern des Instituts für Nukleare Entsorgung und Techniktransfer der RWTH Aachen für die gute Zusammenarbeit, meinem Zweitgutachter Prof. Dr. Dirk Bosbach für die Unterstützung seitens des Instituts für Nukleare Entsorgung und Reaktorsicherheit im Forschungszentrum Jülich und der Kerntechnischen Gesellschaft (KTG) für die Auszeichnung meiner wissenschaftlichen Arbeiten mit dem Karl-Wirtz-Preis im Jahr 2013 bedanken.

Kurzzusammenfassung

Radioaktive Abfälle müssen für eine Verbringung in ein Zwischen- oder ein Endlager die durch die nationalen atomrechtlichen Genehmigungs- und Aufsichtsbehörden festgelegten Spezifikationen und Annahmebedingungen erfüllen. In Deutschland ist das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) für die Errichtung und den Betrieb von Anlagen des Bundes zur Sicherstellung und zur Endlagerung radioaktiver Abfälle verantwortlich und somit die zuständige Behörde, die organisatorischen und administrativen Regelungen der Produktkontrolle zu definieren und die Endlagerfähigkeit von Abfallgebinden zu bestätigen (§§ 9a, 23 AtG). Mit den Endlagerungsbedingungen und den Maßnahmen zur Produktkontrolle, welche im Planfeststellungsverfahren für das Endlager Konrad eingereicht und geprüft wurden, existieren genehmigte und damit festgeschriebene Anforderungen, die radioaktive Abfälle für eine Verbringung in das Endlager Konrad erfüllen müssen. Die Schachtanlage Konrad befindet sich in der Nähe der Stadt Salzgitter und wird derzeit zum Endlager für radioaktive Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung umgebaut. Die Einlagerung der radioaktiven Abfälle wird nicht vor dem Jahr 2021 beginnen.

Die Endlagerungsbedingungen wurden auf der Grundlage einer standortspezifischen Sicherheitsanalyse erarbeitet. Sie beinhalten allgemeine Anforderungen an Abfallgebinde wie auch spezifische Anforderungen an Abfallprodukte und Abfallbehälter, sowie Aktivitätsbegrenzungen für einzelne Radionuklide und Massenbegrenzungen für nicht-radioaktive schädliche Stoffe. Die Massen von 94 nicht-radioaktiven chemotoxischen Stoffen innerhalb der endzulagernden radioaktiven Abfälle sind zum Schutz des Grundwassers limitiert. Um den Endlagerungsbedingungen zu entsprechen, muss jedes Abfallgebinde radiologisch und stofflich charakterisiert werden. Diese Charakterisierung kann auf der Basis einer vorhandenen Abfallgebindedokumentation durchgeführt werden. Für den Fall, dass die Dokumentation nicht hinreichend oder belastbar ist, müssen durch Analyseverfahren zusätzliche Abfalldaten erhoben oder verifiziert werden. Das segmentierte oder integrale Gamma-Scanning sowie die aktive und passive Neutronenmessung werden weltweit als Standardverfahren für die radiologische Charakterisierung und Qualitätskontrolle von Abfällen eingesetzt. Diese Messverfahren bestimmen die isotopenspezifische Aktivität von radioaktiven Abfallprodukten, sind jedoch zur Erkennung von nicht-radioaktiven wassergefährdenden Stoffen ungeeignet.

Vor diesem Hintergrund entwickeln das Institut für Nukleare Entsorgung und Techniktransfer der RWTH Aachen und das Institut für Nukleare Entsorgung und Reaktorsicherheit des Forschungszentrums Jülich ein zerstörungsfreies Messverfahren namens MEDINA (Multi-Element Detection based on Instrumental Neutron Activation) zur Identifizierung und Quantifizierung chemotoxischer Elemente in radioaktiven Abfallprodukten. Das MEDINA-Messverfahren basiert auf der ergänzenden Kombination der Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (engl. PGNAA: Prompt-Gamma-Neutron-Activation-Analysis) und der verzögerten Neutronen-Aktivierungs-Analyse (engl. DGNAA: Delayed-Gamma-Neutron-

Activation-Analysis). Die Neutronen-Aktivierungs-Analyse an Materialproben im Grammbereich ist Stand von Wissenschaft und Technik und erfolgt mittels thermischer bzw. kalter Neutronen an Forschungsreaktoren. Die hieraus gewonnen nuklearen Daten und die Ergebnisse einer Machbarkeitsstudie zur Charakterisierung von großvolumigen Proben bis zu einem Volumen von 50-l /1-5/ sind die wissenschaftlichen Grundlagen auf denen die vorliegende Dissertation aufbaut. Mit einer neu entwickelten Testeinrichtung und einem innovativen Auswertealgorithmen für eine rotationsabhängige Messung kann erstmalig die Elementquantifizierung von größeren inhomogenen Proben unter Berücksichtigung der Gamma- und Neutronenselbstabschirmung durchgeführt werden. Zur Validierung des Messverfahrens wurde eine Testeinrichtung zur stofflichen Charakterisierung von radioaktiven Abfallprodukten - verpackt in 200-l-Fässern - aufgebaut und verschiedene homogene und inhomogene Proben in einer Abfallmatrix aus Beton analysiert. Die Konzeption der MEDINA-Testeinrichtung wurde auf der Basis stochastischer Simulationsstudien mit dem Computer-Code MCNP entwickelt. Das jeweils zu untersuchende Fass befindet sich während einer Messung auf einem Fassdrehteller in einer Bestrahlungskammer aus Graphit. Der Graphit fungiert als Neutronenmoderator und –reflektor. Das Fass wird für eine Messung mit Neutronen bestrahlt, die mittels der Fusionsreaktion zwischen Deuterium und Tritium (D-T) in einem Neutronengenerator pulsweise erzeugt werden. Der Neutronengenerator befindet sich in einer Aussparung der Wandung der Bestrahlungskammer. Die Detektion der durch die Neutronen induzierten prompten oder verzögerten Gamma-Quanten erfolgt durch einen HPGe-Detektor und ist Grundlage der analytischen Auswertung. Der Detektor ist ebenfalls in einer Wand der Bestrahlungskammer positioniert. Er ist orthogonal zur Achse des Neutronengenerators platziert und kann integral das gesamte Volumen des Abfallfasses erfassen. Die Detektorsignale werden durch eine angepasste Nuklearelektronik verarbeitet. Die Gamma-Spektren werden jeweils für diskrete Rotationsschritte eines Fasses aufgenommen. Der entwickelte Algorithmus für die Elementquantifizierung basiert auf der Aktivierung mit thermischen und epithermischen Neutronen und beinhaltet die Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmung innerhalb eines Abfallfasses. Der Quantifizierungsalgorithmus berücksichtigt ebenfalls, ob ein Element homogen oder räumlich konzentriert in einer Abfallmatrix verteilt ist. Hierdurch ist die Untersuchung der Homogenität der Elementverteilung innerhalb einer Abfallmatrix möglich. Die erforderlichen Eingangsparameter für die Elementquantifizierung sind die aufgenommenen winkelabhängigen Gamma-Spektren und der integrale thermische Neutronenfluss im Fasskörper.

Am Ende der Arbeit werden für definierte Standardbestrahlungs- und Messparameter die Nachweisgrenzen für ausgewählte Elemente bestimmt. Abschließend wird die Eignung von MEDINA für die stoffliche Charakterisierung von wassergefährdenden Stoffen im Rahmen der Produktkontrolle für das Endlagerung Konrad bewertet. Das Messverfahren ist bzgl. der Sensitivität geeignet die meisten wassergefährdenden Elemente zu identifizieren und zu quantifizieren. Falls der Dokumentationsgrad zum Nachweis nicht hinreichend ist, ist MEDINA ein geeignetes zerstörungsfreies Messverfahren um radioaktive Abfallprodukte verpackt in 200-l-Fässern stofflich zu charakterisieren.

Abstract

Radioactive waste has to meet the specifications and acceptance criteria defined by national regulatory and management authorities for its intermediate and final storage. In Germany the Federal Office for Radiation Protection (Bundesamt für Strahlenschutz - BfS) has established waste acceptance requirements for the Konrad repository. Konrad is the disposal for radioactive waste with negligible heat generation and is located near the city of Salzgitter and is currently under construction. It will start operation not before the year 2021. The waste-acceptance-requirements are derived from a site-specific safety assessment. They include specific requirements on waste forms, packaging as well as limitations to activities of individual radionuclides and limitations to masses of non-radioactive harmful substances. The amount of chemically toxic elements in the waste is limited in order to avoid pollution of underground water reserves. To comply with these requirements every waste package has to be characterised in its radiological and chemical composition. This characterisation can be performed on the basis of existing documentation or, if the documentation is insufficient, on further analytical analysis. Segmented or integral gamma-scanning as well as active or passive neutron counting are used worldwide as the standard measurement methods for the radiological characterisation and quality checking of radioactive waste. These techniques determine the isotope specific activity of waste packages, but they do not allow the detection of non-radioactive hazardous substances inside the waste packages.

Against this background the Institute of Nuclear Engineering and Technology Transfer (NET) at RWTH Aachen University and the Institute of Safety Research and Reactor Technology at Forschungszentrum Jülich jointly develop an innovative non-destructive analytical technique called MEDINA - “Multi-Element Detection based on Instrumental Neutron Activation” for the identification and quantification of toxic elements in radioactive waste forms. The physical basis of MEDINA is the Prompt- and Delayed-Gamma-Neutron-Activation-Analysis (P&DGNAA). The neutron activation analysis of material samples in the gram range is state-of-the-art of science and technology under use of thermal or cold neutrons at research reactors. The thereof retrieved nuclear data and the results of the feasibility study for the characterization of large-volume samples up to a volume of 50 l /1-5/ are the scientific basis of the present dissertation. With a newly developed test facility and an innovative algorithms for a rotationally dependent analysis the element quantification of larger inhomogeneous samples can be performed by taking into account the gamma and neutron self-shielding for the first time.

A test facility for the chemical characterisation of 200-l-drums was built and several homogeneous and inhomogeneous samples with a waste matrix of concrete were analysed to validate the measurement technique. The conceptual design of the MEDINA test facility is based on stochastic simulations studies with the computer code MCNP. For a measurement the drum of interest is positioned on a turntable inside an irradiation chamber made exclusively of graphite, acting as neutron moderator and reflector. The drum is irradiated with 14 MeV neutrons produced by a deuterium–tritium (D-T) neutron-generator

operating in pulse mode. The prompt and delayed gamma rays, induced by neutron reactions occurring at different times after the neutron pulses, are measured with a high-purity germanium (HPGe) detector placed in a wall of the irradiation chamber perpendicular to the neutron generator. The HPGe detector signals are processed through an appropriate nuclear electronics. The gamma rays spectra are recorded for each discrete drum rotation, which allows to investigate the sample homogeneity. The developed algorithm for the element quantification is based on the activation with thermal and epithermal neutrons and includes the neutron and photon self-absorption in the drum filled with waste. The quantification algorithm takes into account whether an element is distributed homogeneously or spatially concentrated in a waste matrix. The required inputs for the element quantification are the recorded angle-dependent gamma spectra and the integral thermal neutron flux in the drum body.

At the end of the thesis, the detection limits for standard irradiation and measurement conditions of selected elements are determined. In conclusion the suitability of MEDINA for the chemical characterisation relating to the declaration of harmful substances is presented. The test facility has the sensitivity to identify and quantify most toxic elements which have to be declared in the disposal procedure. If the documentation degree of radioactive waste is not adequate, MEDINA is a non-destructive measurement method to identify and quantify water pollutants inside waste forms packed in 200-l-drums.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung & Zielsetzung 13

2. Entsorgung radioaktiver Abfälle in der BRD 19

2.1 Gesetzliche Grundlagen & Herkunft radioaktiver Abfälle 20

2.2 Endlagerung radioaktiver Abfälle 23

2.3 Produktkontrolle radioaktiver Abfälle 29

2.4 Zerstörungsfreie Charakterisierungsverfahren 36

2.4.1 Strukturelle Charakterisierungsverfahren 38

2.4.2 Radiologische Charakterisierungsverfahren 43

2.5 Anforderungen an ein Analyseverfahren zur stofflichen Charakterisierung 47

3. Stand von Wissenschaft und Technik in der Neutronen-Aktivierungs-Analyse 53

3.1 Historische Entwicklung 54

3.2 Physikalische Grundlagen 56

3.3 Neutronen-Selbstabschirmung 58

3.3.1 Aktivierung einer Kugel 62

3.3.2 Aktivierung einer Platte 62

3.3.3 Aktivierung eines Zylinders 63

3.4 Gamma-Selbstabschirmung 65

3.4.1 Gamma-Selbstabschirmungsfaktor einer Platte 68

3.4.2 Gamma-Selbstabschirmungsfaktor eines Zylinders 68

3.4.3 Gamma-Selbstabschirmungsfaktor einer Kugel 68

3.5 Industrielle Anwendung der Neutronen-Aktivierungs-Analyse 70

3.5.1 Bohrlochmessungen zur Exploration von Öl- und Gaslagerstätten 72

3.5.2 Online-Qualitätskontrolle von Rohstoffmassenströmen beim Bergbau 73

3.5.3 Korrosionsfortschritt von stahlarmierten Betonstrukturen 74

3.5.4 Westinghouse-Prototyp zur Abfallcharakterisierung 76

3.5.5 REGAIN-Messzelle 77

3.5.6 PGNAA-Testeinrichtung zur zerstörungsfreien Charakterisierung von 50-l-Fässern 78

4. Zyklische Neutronen-Aktivierungs-Analyse mit einer hochenergetischen Quelle 81

4.1 Moderation von schnellen Neutronen 82

4.2 Gepulste Neutronen-Aktivierungs-Analyse 87

4.3 Fälle der Elementquantifizierung bei der zyklischen Neutronen-Aktivierung-Analyse 93

5. MEDINA-Testeinrichtung 105

5.1 Aufbauort und Systemkomponenten 106

5.2 Die Neutronenquelle 107

5.3 Bestrahlungskammer 112

5.4 Trägermaterial der Bestrahlungskammer 118

5.5 Fassdrehteller 121

5.6 Gamma-Spektrometer 123

5.7 Aktivierung des Detektorkristalls und Detektorabschirmung 126

5.8 Optimierung der Nuklearelektronik 128

5.9 Standardbestrahlungs- und Messparameter 131

5.10 Probabilistische Simulation 133

6. Herstellung von Referenzfässern 137

6.1 Spezifikation des 200-l-Referenzfasses 138

6.2 Herstellung von Betonformkörpern 139

6.3 Elementanalyse der Betonmatrix 142

7. Experimentelle Anlagenparametrisierung 143

7.1 Bestimmung der Photopeak-Effizienz mittels Punktquellen 144

7.2 Effizienzkalibrierung für 200-l-Fässer 149

7.3 Passives Untergrundspektrum 152

7.4 Aktives Untergrundspektrum 154

7.5 Residualaktivität der Bestrahlungseinrichtung 162

7.6 Einfluss von radioaktivem Inventar 164

7.7 Lebensdauer der thermischen Neutronen 168

8. Bestimmung von Neutronenflüssen 175

8.1 Bestimmung des thermischen und epithermischen Neutronenflusses im Mittelpunkt eines leeren Fasses ... 176
8.2 Validierung des experimentell ermittelten Neutronenflusses im Mittelpunkt eines leeren 200-l-RRW-Fasses ... 179
8.3 Integraler Neutronenfluss im Fasskörper ... 182
8.4 Integraler Neutronenfluss in der Betonmatrix ... 185
8.5 Residualaktivität von Probematerial ... 188
9. Gamma-Signaturen ausgewählter Elemente ... 195
9.1 Gamma-Signaturen von Beiprodukten in radioaktiven Abfällen ... 196
9.1.1 Aluminium ... 196
9.1.2 Kupfer ... 198
9.1.3 Zirkonium ... 200
9.1.4 Tantal ... 202
9.2 Gamma-Signaturen von wassergefährdenden Leitsubstanzen ... 204
9.2.1 Beryllium ... 204
9.2.2 Arsen ... 207
9.2.3 Selen ... 209
9.2.4 Quecksilber ... 212
10. Studie über räumlich konzentrierte Elemente in 200-l-Fässern ... 217
10.1 Korrelationsstudie über die Aktivierung eines Cadmiumblechs in einem 200-l-Fass mit einer Betonmatrix ... 218
10.2 Auswertung der winkelabhängigen Zählratenverteilungen ... 223
10.3 Lokalisierung räumlich konzentrierter Elemente ... 231
10.4 Inhomogener Neutronenfluss in der Betonmatrix ... 234
11. Quantifizierung der Elementmasse ... 237
11.1 Verfahrensablauf zur Elementquantifizierung ... 238
11.2 Quantifizierung einer Elementmasse bei homogener Elementverteilung in einer Fassmatrix ... 243
11.3 Einflussfaktoren bei der Quantifizierung von räumlich konzentrierten Elementverteilungen ... 246
11.3.1 Rotation einer räumlich konzentrierten Elementverteilung ... 247

11.3.2 Gamma-Abschwächung in der Fassmatrix sowie in der Stahlwandung des Fasses 251
11.3.3 Inhomogenität des Neutronenflusses 254
11.4 Quantifizierung einer Elementmasse bei räumlich konzentrierten Elementverteilungen 268
12. Nachweisgrenzen 273
12.1 Nachweisgrenzen von homogen verteilten Elementen in einer Abfallmatrix 274
12.2 Nachweisgrenzen von räumlich konzentrierten Elementen 279
13. Zusammenfassung und Ausblick 283
13.1 Eignung von MEDINA im Endlagerungsverfahren 284
13.2 Optimierungsansätze für MEDINA 287
14. Abkürzungsverzeichnis 293
15. Begriffsdefinitionen 295
16. Literaturverzeichnis 303

Kapitel 1

Formel-Kapitel (nächstes) Abschnitt 1

Einleitung & Zielsetzung

Die zivilisatorische Entscheidung zur Nutzung der Kerntechnik bedingt unweigerlich die gesellschaftliche und technische Auseinandersetzung mit radioaktiven Folgelasten. Durch Kerntechnik erbrachte Fortschritte in Medizin, Materialwissenschaften und Industrie implizieren unumgänglich radioaktive Abfälle. Die Entscheidung zur Energieerzeugung durch Kernspaltung macht ebenfalls eine dauerhafte Entsorgung radioaktiver Abfälle aus Betrieb und Stilllegung von Kernkraftwerken sowie dem gesamten Kernbrennstoffkreislauf zur zwingenden Voraussetzung. Aufgrund ihres Gefahrenpotentials müssen radioaktive Abfälle sachgerecht entsorgt werden. Die vom Abfall ausgehende Gefährdung begründet sich aus den im Abfall enthaltenen Radionukliden, deren emittierte ionisierende Strahlung eine biologische Schädigung verursachen kann, sowie aus den im Abfall enthaltenen wassergefährdenden Stoffen. Radioaktive Abfälle weisen oft nicht zu vernachlässigende Konzentrationen chemotoxischer Elemente wie Quecksilber, Cadmium oder Blei auf. Im Gegensatz zu den radiologischen Gefährdungen reduzieren sich die chemotoxischen Auswirkungen für den Menschen oder andere lebende Organismen nicht, sondern sind persistent.

Das deutsche Entsorgungskonzept umfasst die Separation, Sammlung, Konditionierung und Endlagerung radioaktiver Abfälle. Die Konditionierung beinhaltet die Verarbeitung und die endlagergerechte Verpackung radioaktiver Abfälle. Eine Verarbeitung geschieht unter der Prämisse einer Volumenreduktion oder der Einbindung der Abfälle in eine Abfallmatrix mit radionuklidrückhaltender Wirkung, um auch bezogen auf die Betriebs- und Nachbetriebsphase eines Endlagers eine geringe Radionuklidfreisetzung zu gewährleisten. Die Verpackung erfolgt in standardisierten Abfallbehältern gemäß den gültigen Anforderungen für die Endlagerung in tiefen geologischen Formationen. Die Errichtung und der Betrieb eines Endlagers ist ein planfeststellungspflichtiges Verwaltungsverfahren. Mit der Entscheidung des Bundesverwaltungsgerichts vom 26. März 2007, bekannt gegeben am 03. April 2007, hat der Planfeststellungsbeschluss für das Endlager Konrad Rechtskraft erlangt. Derzeit wird nun auf Basis des deutschen Atomgesetztes /2-6/ das erste Bundesendlager errichtet. Es wird jedoch voraussichtlich nicht vor dem Jahr 2021 in Betrieb gehen.

Die Schachtanlage ist alleinig für den nationalen Bedarf der Entsorgung vernachlässigbar wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle zugelassen. Radioaktive Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung machen ungefähr 90 Prozent des gesamten radioaktiven Abfallvolumens in Deutschland aus, enthalten aber nur etwa 1 Prozent der gesamten Radioaktivität endzulagernder Abfälle. Basierend aus der Strahlenschutzverordnung /2-12/ sind bei der Einlagerung in das Endlager individuell für jedes endzulagernde Abfallgebinde nuklidspezifische Grenzwerte, welche auf der Grundlage standortspezifischer Sicherheitsanalysen erarbeitet wurden, einzuhalten. Diese Sicherheitsanalysen sind Grundlage der planfestgestellten Antragsunterlagen.

Durch seine Konzentrationswirkung ersetzt der Planfeststellungsbeschluss für das Endlager Konrad alle anderen notwendigen Genehmigungen, u. a. auch die wasserschutzrechtlichen Erlaubnisse. In der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis zur Endlagerung von radioaktiven Abfällen im Endlager Konrad sind Stoffe, die eine Verunreinigung des Grundwassers oder eine sonstige nachteilige Veränderung seiner Eigenschaften verursachen könnten, beschränkt /1-1/. Die Einhaltung dieser stoffspezifischen Genehmigungswerte dient dem Schutz des oberflächennahen Grundwassers vor radioaktiven Stoffen sowie vor Stoffen, die aufgrund ihrer chemotoxischen Eigenschaften schädlich für Mensch und Umwelt sind. Eine mögliche Freisetzung dieser Stoffe aus dem Endlagerbereich in die Biosphäre kann nur über einen Wasserpfad erfolgen. Die Transportzeit vom Endlagerhorizont bis in das oberflächennahe Grundwasser beträgt mindestens 300.000 Jahr /1-1/.

Endzulagernde Abfälle müssen grundsätzlich bezüglich ihres radioaktiven und stofflichen Inventars charakterisiert werden /1-2/1-3/. Abfallverursacher bzw. Ablieferungspflichtige sind für die zuverlässige Charakterisierung ihrer Abfälle verantwortlich. Die stoffliche Beschreibung und die Deklarationen erfolgen über ein System von Stoffvektoren, welche im Auftrag des Bundesamts für Strahlenschutz (BfS) auf die Anwendbarkeit einer jeweiligen Abfallcharge bzw. eines Abfallstroms geprüft werden /1-3/. Die Zusammenstellung dieser Stoffvektoren erfolgt in einer zentral vom BfS geführten abfallspezifischen Stoffdatenbank, der sogenannten Stoffliste, auf die Abfallverursacher und Ablieferungspflichtige Onlinezugriff haben. Die im Endlagerungsverfahren zu Grunde gelegten Beschreibungs- und Deklarationsvorschriften für wasserrechtlich relevante Stoffe sind zusammen mit den übrigen Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung in die Schachtanlage Konrad durch das BfS vorgegeben. Die zuständige Aufsichtsbehörde im Wasserrecht, der Niedersächsische Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz (NLWKN) hat dem vom BfS definierten Verfahren zur Umsetzung der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis zur Endlagerung von radioaktiven Abfällen im Endlager Konrad zugestimmt /1-1/. Vor einer Einlagerung werden die stofflichen und nuklidspezifischen Deklarationen der Abfälle überprüft /1-2/1-3/. Diese Qualitätssicherung obliegt als Teil der Produktkontrolle im Verantwortungsbereich dem BfS, bzw. einer vom BfS beauftragten Sachverständigenorganisation.

Bei bestehenden Abfallströmen ist eine plausible Herleitung dieser Stoffvektoren anhand von Ein- und Ausgangsbilanzierungen oder vereinzelten chemischen Analysen grundsätzlich möglich. Bei Altabfällen (Abfall, der zum Zeitpunkt der Bestandskraft der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis bereits konditioniert bei den Abfallverursachern oder bei Dritten im Sinne von §78 StrlSchV lagerte) ist eine solche Plausibilitätsbetrachtung oder eine generelle Stoffdeklaration ausgehend von einer eingeschränkten Dokumentationslage ggf. problematisch oder gar nicht praktikabel. Selbst wenn eine stoffliche Beschreibung anhand einer Dokumentation herleitbar ist, so besteht stets die Frage nach der Vollständigkeit, da damalige Stoffdaten nicht unter dem heute geforderten Detaillierungsgrad erhoben wurden. Methoden zur Erhöhung des Informationsgehalts, wie das Öffnen von Fässern mit Altabfall für eine visuelle Kontrolle oder eine zerstörende Prüfung, wie z. B. eine Bohrkernentnahme, führen zu einer zusätzlichen Strahlenexposition sowie einer Deklaration der zu untersuchenden Abfälle als Neuabfall. An Neuabfälle sind jedoch im Gegensatz zu Altabfällen restriktivere Beschreibungsschwellenwerte geknüpft, wodurch diese Verfahren die stoffliche Beschreibung eher komplizieren. Zusätzlich müssen bei zerstörenden Analyseverfahren Aktivitätsfreisetzungen und Kontaminationen weitgehend vermieden werden. Hierfür sind kontaminationsbeschränkende und abschirmende Einrichtungen zur Reduzierung der Strahlenexposition von Betriebspersonal notwendig. Ebenfalls nachteilig bei zerstörenden Prüfungen oder einer visuellen Inspektion ist die Entstehung von Sekundärabfällen und die Tatsache, dass die Ergebnisse bzgl. ihrer Repräsentativität für den gesamten Abfallbehälter angezweifelt werden können.

Vor diesem Hintergrund wurde im Jahr 2007 am Institut für Nukleare Entsorgung und Reaktorsicherheit des Forschungszentrums Jülich ein Forschungsprogramm mit dem Ziel gestartet, ein zerstörungsfreies Messverfahren zur Identifizierung und Quantifizierung toxischer Elemente in großvolumigen Behältern zu entwickeln. In einer Studie inklusive der Errichtung und dem Betrieb einer Testeinrichtung, mit der chemotoxische Inhaltsstoffe in Proben bis zu einem Volumen von 50-l detektiert werden konnten /1-5/, konnte die Machbarkeit nachgewiesen werden. Zwecks Fortführung des Forschungsprogramms wurde in Kooperation mit dem Institut für Nukleare Entsorgung und Techniktransfer (NET) der RWTH Aachen im Jahr 2010 mit der Entwicklung eines innovativen Analyseverfahrens mit der Bezeichnung **MEDINA** - **M**ulti-**E**lement **D**etection based on **I**nstrumental **N**eutron **A**ctivation begonnen.

MEDINA ist ein zerstörungsfreies Messverfahren mit analytischer Auswertung zur Elementquantifizierung. Da ein Großteil des radioaktiven Abfalls, insbesondere die in der Vergangenheit angefallenen Altabfälle, in Fässern mit einem Fassungsvermögen von 200 Liter verpackt wird bzw. wurde, ist MEDINA primär für die stoffliche Charakterisierung von 200-l-Fässern konzipiert. Das zu untersuchende Fass befindet sich während der Messung auf einem Fassdrehteller in einer Bestrahlungskammer aus Graphit. Der Graphit fungiert als Neutronenmoderator und –reflektor. Das Fass wird für eine Messung mit Neutronen bestrahlt, die mittels der Fusionsreaktion zwischen Deuterium und Tritium (D-T) mit geringer Energieanisotropie in einem Neutronengenerator erzeugt werden. Der Neutronengenerator kann kontinuierlich oder pulsend im Bereich von 10 Hz bis 10 kHz arbeiten und erzeugt eine maximale Neutronenemissionsrate von $2 \cdot 10^8$ n/s. Er befindet sich in der Wandung der

Bestrahlungskammer. Die Detektion von Gamma-Quanten geschieht durch einen 100 % n-Type HPGe-Detektor und ist Grundlage der analytischen Auswertung. Der Detektor ist ebenfalls in einer Wand der Bestrahlungskammer positioniert. Er ist orthogonal zur Achse des Neutronengenerators platziert und kann das gesamte Volumen des Abfallfasses erfassen. Das Detektorgehäuse ist zur Vermeidung der Aktivierung des Germaniumkristalls durch thermische Neutronen mit einer ^{6}LiF-Abschirmung ummantelt /1-5/. Das MEDINA-Messverfahren basiert auf der Kombination der Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (engl. PGNAA: Prompt-Gamma-Neutron-Activation-Analysis) und der verzögerten Neutronen-Aktivierungs-Analyse (engl. DGNAA: Delayed-Gamma-Neutron-Activation-Analysis). Als Teil der vorliegenden Arbeit wurde die in Abb. 1.1 dargestellte MEDINA-Testeinrichtung konzipiert, neutronenphysikalisch simuliert, aufgebaut und in Betrieb genommen. Anschließend wurden verschiedene Probenfässer hergestellt, die sowohl homogene als auch inhomogen verteilte Elemente in einer Betonmatrix enthielten (siehe Abb. 1.1 rechts). Es wurde ein analytisches Verfahren entwickelt, welches basierend auf der winkelabhängigen Zählratenverteilung detektierter Gamma-Emissionen unter Berücksichtigung von Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmungseffekten eine Elementquantifizierung ermöglicht. Das MEDINA-Messverfahren inkl. Quantifizierungsalgorithmus wurde für ein internationales Patent angemeldet /1-6/.



Abb. 1.1 links: *MEDINA-Testeinrichtung zur Untersuchung von 200-l-Fässern,* ***rechts:*** *200-l-Probenfass befüllt mit Betonformkörpern und einer Bleiprobe für Inhomogenitätsstudien.*

Bezüglich einer Einbindung von MEDINA als zerstörungsfreies Analyseverfahren zur stofflichen Charakterisierung im Endlagerungsverfahren Konrad wurde ein Anforderungsprofil erstellt. Primäre Zielgrößen des daraus abgeleiteten Kriterienkatalogs sind: eine repräsentative Untersuchbarkeit des gesamten Abfallvolumens, ein abdeckender Bestimmungsbereich von wassergefährdenden Substanzen, die Minimierung der Strahlenexposition des Betriebspersonals im Vergleich zu alternativen Prüfmethoden sowie eine Kostenminimierung für den Abführungspflichtigen. Anhand des erhobenen Kriterienkatalogs wird die Eignung und Leistungsfähigkeit von MEDINA als mögliche Routineanalysetechnik im Endlagerungsverfahren bewertet.

Es ist zu überprüfen, ob die technische Auslegung der MEDINA-Testeinrichtung hinreichend ist, um eine stoffliche Charakterisierungen von 200-l-Fässern durchführen zu können und ob die realisierbaren Nachweisgrenzen für wassergefährdende Elemente und Stoffe unterhalb der Beschreibungsschwellenwerte des BfS liegen. Nur wenn neben den an ein Endlager gestellten sicherheitstechnischen Anforderungen auch der Charakterisierung und der Produktkontrolle in der nuklearen Entsorgung eine ebenbürtige Bedeutung beigemessen wird, kann das Ziel der Endlagerung, der langfristige Schutz von Mensch und Umwelt, realisiert werden. MEDINA könnte hierzu einen positiven Betrag leisten.

Kapitel 2

Entsorgung radioaktiver Abfälle in der BRD

Formel-Kapitel (nächster) Abschnitt 1

Zusammenfassung

Ausgehend von der physikalischen und juristischen Definition, was radioaktive Abfälle sind, widmet sich das Kapitel zunächst den Fragestellungen zur Herkunft und dem prognostizierten Volumen radioaktiver Abfälle. Die sachgerechte Entsorgung dieser Abfälle beinhaltet - nach einer Konditionierung und Zwischenlagerung - die Endlagerung in tiefen geologischen Formationen. Die Beseitigung bzw. Endlagerung der radioaktiven Abfälle soll in nationaler Verantwortung gelöst werden. Die Produktkontrolle radioaktiver Abfälle beinhaltet als Teil der Qualitätssicherung die durchzuführenden Nachweise und Prüfungen zur Einhaltung der Endlagerungsbedingungen. Sie ist in einen radiologischen und einen stofflichen Teil gegliedert, wobei die stofflichen Aspekte die sachgemäße Erfassung und Beschreibung der stofflichen Zusammensetzung von Abfallgebinden beschreiben. Innerhalb der radiologischen Produktkontrolle kommen verschiedene zerstörungsfreie Charakterisierungsverfahren nach dem Stand von Wissenschaft und Technik zur Anwendung. Diese werden kurz vorgestellt. Für MEDINA wird ein Anforderungsprofil dargelegt, bei dessen Entsprechung das Messverfahren als innovatives analytisches Verfahren zur stofflichen Charakterisierung von Abfallprodukten und somit in der stofflichen Produktkontrolle eingesetzt werden könnte.

2.1 Gesetzliche Grundlagen & Herkunft radioaktiver Abfälle

Die in der Nukleartechnik anfallenden Abfälle unterscheiden sich von den Abfällen der sonstigen Industrie durch die in ihnen enthaltenen radioaktiven Stoffe. Radioaktivität ist die Eigenschaft instabiler Atomkerne, verzögert über eine Halbwertszeit unter charakteristischer Energieabgabe zu zerfallen. Beim Zerfall wird die freiwerdende Energie durch ionisierende Strahlung und kinetische Energie der Atomkerne abgegeben. Die ionisierende Strahlung besteht aus Photonen, auch Gamma-Quanten genannt, und materiellen Teilchen, zusammenfassend Strahlungsteilchen genannt. Die Instabilität der Atomkerne ist durch ein „ungünstiges“ Verhältnis der Kernbausteine Protonen und Neutronen zueinander bedingt. Für jedes Element (definiert durch seine Ordnungszahl, d. h. Protonenzahl, Symbol: Z) gibt es ein optimales Verhältnis von Protonen zu Neutronen, in dessen Nähe die stabilen Isotope liegen. Dieses Verhältnis ist bei leichten Kernen 1:1, verschiebt sich jedoch bei schweren Kernen aufgrund der abstoßenden Coulomb-Kräfte zugunsten der Neutronenzahl N. Die stabilen Kerne liegen in einer Z, N-Darstellung in unmittelbarer Nähe einer so genannten Stabilitätslinie. Kerne, die weiter weg von der Stabilitätslinie liegen, d. h. Kerne mit Neutronen- oder Protonenüberschuss, zerfallen solange, bis sich ein stabiler Atomkern gebildet hat.

Nuklide mit der gleichen Ordnungszahl und unterschiedlicher Neutronenanzahl heißen Isotope. Ein Element kann aus einem oder mehreren stabilen Isotopen bestehen, die in einem bestimmten Mengenverhältnis (Isotopenverhältnis) natürlich vorkommen. Die weitaus meisten Isotope eines Elements sind jedoch instabil und können nur künstlich erzeugt werden. Bei den in der Natur vorkommenden Radionukliden spricht man von natürlicher Radioaktivität. „Natürliche Radionuklide“ sind entweder aufgrund ihrer großen Halbwertszeit seit Entstehen der Erde vorhanden (primordiale Radionuklide) oder werden durch kosmische Strahlung ständig nachgebildet (kosmogene Radionuklide). Entstehen Radionuklide durch Kernumwandlungen im Kernreaktor oder durch Aktivierung, so spricht man von künstlicher Radioaktivität.

Radioaktivität ist ubiquitär in der Natur vorhanden, somit sind alle Abfälle radioaktiv. Es gilt demnach zu definieren, welche Materialien und deren Entsorgung als radioaktive Abfälle separat behandelt werden. Die Europäische Union benutzt eine Definition der radioaktiven Abfälle, die sich mit der in der Internationale Atomenergieorganisation (IAEA) entwickelten Definition deckt:

„Jedes Material, das Radionuklide in Konzentrationen oder Aktivitätspegeln oberhalb der vorgeschriebenen Grenzwerte enthält oder durch sie kontaminiert ist und für das kein Verwendungszweck vorgesehen ist.“ (IAEA)

Diese Definition erfasst in Abhängigkeit der genannten Kriterien ebenfalls „NORM“-Abfälle („NORM“ – Natural Occuring Radioactive Material) als radioaktiven Abfall. Diese sind Materialien mit natürlich vorkommenden radioaktiven Isotopen, die als Abfälle z. B. beim Bergbau oder der Erdöl- und Erdgasindustrie in erheblichen Mengen anfallen. Die Definition von radioaktiven Abfällen im deutschen

Rechtssystem knüpft an die obige an und findet sich im Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz: AtG) /2-6/ wieder. Die Begriffsbestimmung in §2 AtG definiert zunächst juristisch, wann Stoffe radioaktiv sind und somit unter den Einflussbereich des Gesetzestext fallen:

„Alle Stoffe, die ein Radionuklid oder mehrere Radionuklide enthalten und deren Aktivität oder spezifische Aktivität im Zusammenhang mit der Kernenergie oder dem Strahlenschutz nach den Regelungen des Atomgesetzes oder einer auf Grund dieses Gesetzes erlassenen Rechtsverordnung nicht außer Acht gelassen werden kann, sind radioaktiv.“ (§2 AtG)

Bei den hier erwähnten untergesetzlichen Regeln ist die Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung: StrlSchV) primär berücksichtigungsrelevant /2-12/, da dort Radionuklide und zugehörige massen- oder volumenspezifische Aktivitätsgrenzwerte aufgelistet werden. Anfallende Reststoffe setzen sich aus weiter- bzw. wiederverwendbaren Stoffen und aus radioaktiven Abfällen zusammen. Radioaktive Abfälle sind somit Reststoffe, die im Sinne des AtG § 2 Abs. 1 radioaktive Stoffe enthalten und die nach § 9a des Atomgesetzes geordnet beseitigt werden müssen (vgl. Begriffsbestimmung DIN 25401 vom 21.02.2011). In Abb. 2.1 werden die zuvor erwähnten betreffenden gesetzlichen Grundlagen aus dem AtG in Auszügen zitiert.

AtG § 2 Begriffsbestimmungen
Fassung vom 13.12.2001
(1) Radioaktive Stoffe (Kernbrennstoffe und sonstige radioaktive Stoffe) im Sinne dieses Gesetzes sind alle Stoffe, die ein Radionuklid oder mehrere Radionuklide enthalten und deren Aktivität oder spezifische Aktivität im Zusammenhang mit der Kernenergie oder dem Strahlenschutz nach den Regelungen dieses Gesetzes oder einer auf Grund dieses Gesetzes erlassenen Rechtsverordnung nicht außer Acht gelassen werden kann. Kernbrennstoffe sind besondere spaltbare Stoffe in Form von

1. Plutonium 239 und Plutonium 241,
2. mit den Isotopen 235 oder 233 angereichertem Uran,
3. jedem Stoff, der einen oder mehrere der in den Nummern 1 und 2 genannten Stoffe enthält,
4. Stoffen, mit deren Hilfe in einer geeigneten Anlage eine sich selbst tragende Kettenreaktion aufrechterhalten werden kann und die in einer Rechtsverordnung bestimmt werden;

AtG § 9a (1) Verwertung radioaktiver Reststoffe und Beseitigung radioaktiver Abfälle
Fassung vom 22.04.2002
(1) Wer Anlagen, in denen mit Kernbrennstoffen umgegangen wird, errichtet, betreibt, sonst innehat, wesentlich verändert, stilllegt oder beseitigt, außerhalb solcher Anlagen mit radioaktiven Stoffen umgeht oder Anlagen zur Erzeugung ionisierender Strahlen betreibt, hat dafür zu sorgen, dass anfallende radioaktive Reststoffe sowie ausgebaute oder abgebaute radioaktive Anlagenteile den in § 1 Nr. 2 bis 4 bezeichneten Zwecken entsprechend schadlos verwertet werden oder als radioaktive Abfälle geordnet beseitigt werden (direkte Endlagerung).

Abb. 2.1: *Gesetzliche Grundlagen radioaktiver Abfälle gemäß dem Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz: AtG).*

Die Erzeuger von radioaktiven Abfällen sind gesetzlich dazu verpflichtet, ihre Abfälle an ein Endlager oder eine Landessammelstelle abzuliefern und den Verbleib den zuständigen atomrechtlichen Aufsichtsbehörden nachzuweisen. Anwender, die Genehmigungen nach § 6, 7 und 9 AtG haben (dies sind insbesondere Kernkraftwerke und Einrichtungen die mit Kernbrennstoffen umgehen, wie auch Großforschungseinrichtungen) müssen in der Regel selbst dafür Sorge tragen, dass ihre Abfälle in einen endlagerfähigen Zustand gebracht werden (Konditionierung). Dieses schließt ein, dass diese ablieferungspflichtigen Verursacher bis zur Inbetriebnahme eines Bundesendlagers ihre Abfälle unter Einhaltung der vom Gesetzgeber vorgegebenen Rahmenbedingungen selber zwischenzulagern haben. Die sonstigen Anwender von Radioisotopen in der gewerblichen Wirtschaft, in der Medizin und in der Forschung haben in der Regel ihre radioaktiven Abfälle an eine für sie zuständige Landessammelstelle abzuliefern (siehe Abb. 2.2).

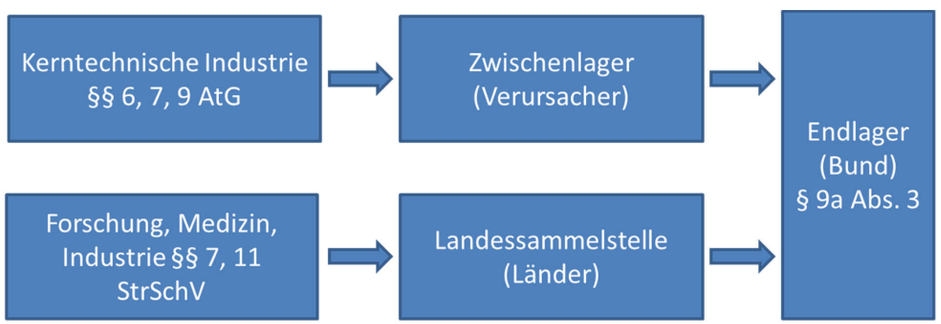


Abb. 2.2: *Ablieferungspflicht für radioaktive Abfälle und Zuständigkeiten.*

Da Kooperationen einzelner Landessammelstellen möglich sind, existieren derzeit 11 Landessammelstellen, deren gesetzlicher Auftrag das Einsammeln und die Zwischenlagerung der radioaktiven Abfälle, nicht jedoch ihre Verarbeitung oder Überführung in einen endlagerfähigen Zustand ist. Zusammenfassend fallen in Deutschland radioaktive Reststoffe und Abfälle hauptsächlich bei folgenden Tätigkeiten an:

- im Zusammenhang mit der Stromerzeugung durch Kernkraftwerke,
- bei Stilllegung und Abbau kerntechnischer Einrichtungen,
- in Medizin und Industrie sowie
- bei Forschungs- und Entwicklungsarbeiten.

Der derzeitige Abfallbestand an konditionierten radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung lässt sich unterschiedlichen Verursachergruppen zuordnen und teilt sich gemäß Abb. 2.3 auf. Der Öffentlichen Hand werden alle Anlagen zugeordnet, die vom Bund und/oder den Ländern finanziert werden (einschließlich der Kernkraftwerke Greifswald und Rheinsberg) sowie das Europäische Institut für Transurane (ITU) in Karlsruhe und die 11 Landessammelstellen. Um für die Endlagerung relevante Abfallvolumina abzuschätzen, sind zu den bereits konditionierten radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung unter anderem die aus dem Restbetrieb sowie dem Rückbau der Kernkraftwerke zukünftig anfallenden Abfälle zu prognostizieren (siehe Tab. 2.1).

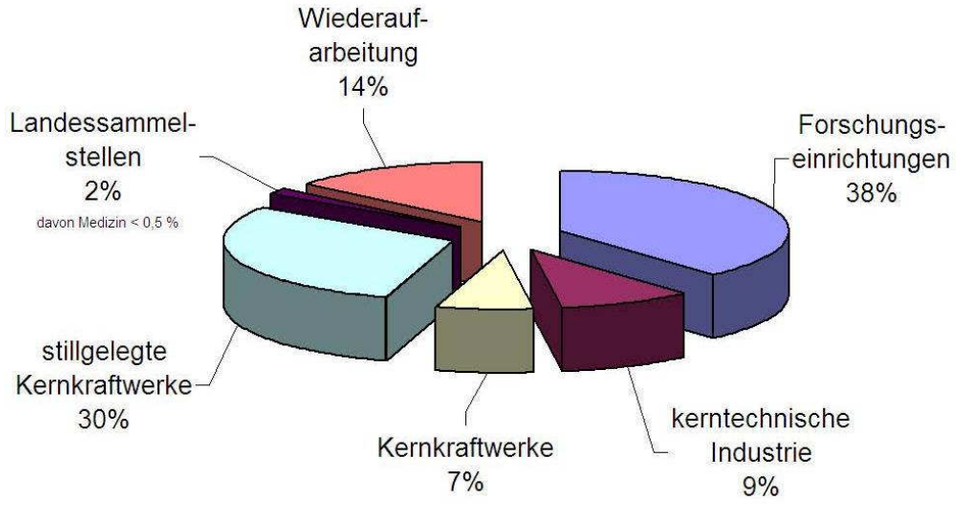


Abb. 2.3: *Erhebung des BfS zur Aufteilung des Bestandes radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung nach Verursachergruppen am 31.12.2012, Gesamtvolumen: 106.357 Kubikmeter /2-9/.*

2.2 Endlagerung radioaktiver Abfälle

Die Zuständigkeiten für die Endlagerung von radioaktiven Abfällen werden im Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz: AtG) geregelt. Zur Beurteilung der Auswirkungen eines Endlagers auf Mensch und Umwelt sind Aspekte des Strahlenschutzes, des Umwelt- und Gewässerschutzes usw. zu beachten, die beispielsweise in der Strahlenschutzverordnung /2-12/ und der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift /2-13/ geregelt sind. Nach § 9a Abs. 3 AtG hat der Bund Anlagen zur Sicherstellung und zur Endlagerung radioaktiver Abfälle einzurichten. Das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) ist die dafür zuständige Behörde und damit verantwortlich für die Errichtung und den Betrieb von Anlagen des Bundes zur Sicherstellung und zur Endlagerung radioaktiver Abfälle.

Für jedes zu errichtende Endlager für radioaktive Abfälle ist ein Nachweis der Sicherheit für die Betriebs- und die Nachverschlussphase zu führen. Hierfür hat das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB), welches die Rechts- und Fachaufsicht über das BfS hat, im Jahr 2010 Sicherheitsanforderungen aufgestellt, die in zukünftigen Verfahren zur Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle einzuhalten sind /2-14/. Für die Einhaltung internationaler Standards, werden bei der Beurteilung der Langzeitsicherheit von Endlagern Vorgaben und Vorschläge der International Atomic Energy Agency (IAEA) /2-15/ und der Nuclear Energy Agency (NEA) /2-16/, einer Untereinheit der Organisation for Economic Co-operation and Development (OECD), berücksichtigt.

Die BMUB-Sicherheitsanforderungen /2-14/ erfordern die Endlagerung radioaktiver Abfälle im tiefen geologischen Untergrund in einer Zone, die ein hohes Einschlussvermögen aufweist. Diese Zone wird einschlusswirksamer Gebirgsbereich (ewG) genannt. Die Sicherheitsanforderungen enthalten keine Vorgaben zur gesetzlichen Vorgehensweise für die Standortauswahl und die Standortgenehmigung. Die Standortauswahl für ein Endlager, insbesondere für wärmeerzeugende radioaktive Abfälle, geschieht nach Beschluss des Bundestages nach einem wissenschaftsbasierten und transparenten Verfahren gemäß dem Gesetz zur Suche und Auswahl eines Standortes für ein Endlager für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle und zur Änderung anderer Gesetze (Standortauswahlgesetz – StandAG) vom 23. Juli 2013 /2-24/.



Abb. 2.4: *Karte mit den Standorten der Endlager Asse, Morsleben, Konrad sowie des Erkundungsbergwerks Gorleben (Bildquelle: BfS).*

Grundsätzlich soll die Entsorgung radioaktiver Abfälle in nationaler Verantwortung gelöst werden. Ein Export und somit die Beseitigung radioaktiver Abfälle in andere Länder außerhalb der Europäischen Union (EU) ist gemäß der von der EU am 19.07.2011 verabschiedeten Richtlinie EURATOM 2011/70 für die verantwortungsvolle und sichere Entsorgung abgebrannter Brennelemente und radioaktiver Abfälle /2-17/ rechtens, ist jedoch unter anderem an die Voraussetzung geknüpft, dass das Bestimmungsland

über Programme für die Entsorgung und Endlagerung radioaktiver Abfälle verfügt, deren Ziele ein hohes Sicherheitsniveau bedeuten und mit denjenigen der Richtlinie gleichwertig sind. Für die Bundesregierung kommt dieser Entsorgungspfad gemäß dem Standortauswahlgesetz /2-24/ nicht in Betracht. Die Bundesregierung wird selbst umfassende Maßnahmen für die Entsorgung der bereits angefallenen und noch anfallenden radioaktiven Abfälle und bestrahlten Brennelemente vorsehen. Diese Maßnahmen zu einer sachgerechten Entsorgung radioaktiver Abfälle beinhalten, nach einer Konditionierung und Zwischenlagerung, die Endlagerung dieser Abfälle in tiefen geologischen Formationen. In Deutschland gibt es vier Endlager bzw. Endlagerprojekte, für die das BfS zuständig ist: Endlager Asse, Endlager Morsleben, Endlager Konrad und das Erkundungsbergwerk Gorleben (geographische Lage siehe Abb. 2.4).

Während Gorleben Teil des neuen Standortauswahlverfahrens ist und heute noch nicht entschieden ist, ob dort jemals radioaktive Abfälle endgelagert werden, befinden sich in Morsleben und der Asse bereits radioaktive Abfälle. Die Endlager Morsleben befindet sich derzeit in einem Genehmigungsverfahren zur Stilllegung. Die Schachtanlage Konrad wird gegenwärtig als Endlager errichtet. Für das Endlager Asse II wird die Rückholbarkeit der radioaktiven Abfälle als Vorzugsvariante geprüft. Das BfS ist atom- und bergrechtlich für die Betriebe Gorleben und Konrad sowie für die Stilllegung des Endlagers Morsleben und der Schachtanlage Asse zuständig.

Übergeordnet kommen zwei Methoden zur Klassifizierung von radioaktiven Abfällen zur Anwendung. Bei der einen werden Abfälle in die Klassen Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeerzeugung und wärmeerzeugende Abfälle unterteilt und bei der anderen Methode werden die Abfälle aufgrund ihres Aktivitätsinventars in die Klassen schwachradioaktiver Abfall (low active waste, LAW), mittelradioaktiver Abfall (medium active wate, MAW) und hochradioaktiver Abfall (high active waste, HAW) untergliedert, wobei die Grenzziehung zwischen den Klassen nicht einheitlich ist (siehe Abb. 2.5).

Bei der Handhabung und dem Transport schwachradioaktiver Abfälle wird wegen der geringen Aktivität keine zusätzliche Abschirmung benötigt. Innerhalb der schwach- und mittelaktiven Abfälle wird noch zwischen kurz- und langlebigen unterschieden. Als langlebig wird der Radionuklidanteil mit Halbwertszeiten größer als 30 Jahre bezeichnet. Weiterhin existiert eine Differenzierung zwischen Abfällen mit geringem und höherem Anteil an Alpha-Strahlern. Die Begründung hierfür ist, dass dicht ionisierende Alpha-Strahler eine hohe biologische Wirksamkeit besitzen und deshalb die direkte Aufnahme von Alpha-Strahlern durch Inkorporation, Inhalation oder Ingestion zu hoher Schädigungswahrscheinlichkeit führt. Für die Endlagerung relevant sind die Wärmeerzeugung sowie die Halbwertszeit radioaktiver Abfälle. In Deutschland erfolgt deswegen die übergeordnete Einteilung der Abfälle nach dem Kriterium der Wärmeerzeugung des Abfalls (siehe Abb. 2.5). Die Wärmeproduktion des Abfalls begründet sich durch den Rückstoß des Atomkerns bei der Emission von Strahlungsteilchen beim radioaktiven Zerfall und der Wechselwirkung der Strahlungsteilchen mit Materie.

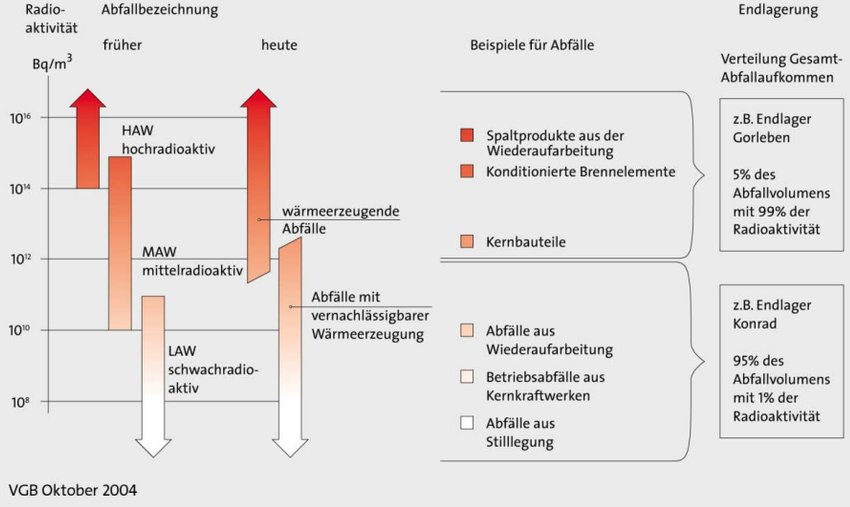


Abb. 2.5: *Klassifizierung radioaktiver Abfälle (Bildquelle: VGB Powertech e.V. Oktober 2004).*

Eine Einteilung gemäß Wärmeproduktion wurde gewählt, da das deutsche Endlagerungskonzept vorsieht, geringfügig wärmeentwickelnde Abfälle in die Schachtanlage Konrad bei Salzgitter einzulagern und das umliegende Wirtsgestein dieser ehemaligen Eisenerzgrube keiner nennenswerten Wärmeeinwirkung ausgesetzt werden soll. Quantifiziert wurde der Begriff im Planfeststellungsbeschluss für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerkes /2-1/. Zu den radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung gehören sämtliche schwach- und mittelaktiven Abfälle, bei denen die Temperaturerhöhung durch die Zerfallswärme der in den Abfallgebinden enthaltenen Radionuklide an der Wand der Einlagerungskammer im Mittel nicht mehr als 3 Kelvin beträgt. Dieser Wert entspricht der natürlichen Temperaturdifferenz bei einem Tiefenunterschied von 100 Metern in Bergwerken. Er ist, verglichen mit der durch die Bewetterung verursachten Temperaturveränderung, gering. Das Wirtsgestein wird durch die kühlere zugeführte Luft aus der Bewetterung bereits deutlich größeren Temperaturschwankungen ausgesetzt. Die Temperaturdifferenz von 3 Kelvin entspricht unter Berücksichtigung der Wärmeleitfähigkeit des Wirtsgesteins einer mittleren Wärmeleistung von etwa 200 Watt je Kubikmeter Abfall. Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung machen ca. 90 Volumenprozent der radioaktiven Abfälle in Deutschland aus, enthalten aber nur 0,1 Prozent der gesamten Radioaktivität endzulagernder radioaktiver Abfälle /2-7/.

Das Endlager Konrad wurde 2002 durch das niedersächsische Umweltministerium nach einem 20 Jahre dauernden Planfeststellungsverfahren genehmigt /2-1/. Seit dem 26. März 2007 ist die Konrad-

Genehmigung höchstrichterlich bestätigt. Um wie zuvor beschrieben das Wirtsgestein des Endlagers vor zu starker Erwärmung zu schützen, wurden Analysen zur thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins durchgeführt und daraus resultierend für die Radioaktivität des endzulagernden Abfalls begrenzende Kriterien festgelegt. Zwei weitere Sicherheitsanalysen und hieraus abgeleitete Kriterien beruhen auf den Auswirkungen von Störfällen beim Umgang und die Gewährleistung der Kritikalitätssicherheit bei der Einlagerung in das Endlager Konrad. Weitere Anforderungen für endzulagernde Abfälle beziehen sich auf die Handhabbarkeit bei der Einlagerung sowie die Verpackung der Abfälle. Je nach Verpackungskonzept und Produktqualität werden für die Beurteilung von Unfallmöglichkeiten unterschiedliche Freisetzungsanteile und freisetzbare Aktivitäten unterstellt, die Rückschluss auf die abgeleitete Aktivitätsbegrenzung zulassen. Bezüglich der Charakterisierung radioaktiver Abfälle muss man die in den Abfällen enthaltenen Radionuklide, die stoffliche Zusammensetzung und das für diese Abfälle veranschlagte Nettovolumen im Endlager, also somit inkl. endlagergerechter Verpackung, berücksichtigen. Hierbei bezeichnet man die endzulagernde Einheit aus Abfallprodukt und endlagergerechtem Abfallbehälter als Abfallgebinde. Basierend auf Modelldaten verteilen sich die Radioaktivität und das Abfallvolumen für das Endlager Konrad auf die in Tab. 2.1 aufgelisteten Abfallverursachergruppen.

Tab. 2.1: *Radioaktivität und Abfallvolumen für das Endlager Konrad unterteilt auf die unterschiedlichen Abfallverursachergruppen /2-7/.*

Verursachergruppe	**Radioaktivität** [%]	**Abfallvolumen** [%]
Kerntechnische Industrie	11,4	4,4
Kernkraftwerke inkl. Stilllegung	72,1	64
Landessammelstellen	0,2	2,4
Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK)	1,1	7,7
Forschungseinrichtungen	15,2	21,5
Sonstige	<0,1	<0,1

Das Endlager Konrad ist gemäß Planfeststellungsbeschluss für ein Abfallgebindevolumen von 303.000 m^3 genehmigt. Prognosen über das zu erwartende Abfallaufkommen gehen von einem kumulierten Abfallgebindevolumen vernachlässigbar wärmeentwickelnder Abfälle von ca. 297.500 m^3 bis zum Jahr 2050 und von ca. 304.000 m^3 bis zum Jahr 2080 aus (Prognose BfS: Stand 13.12.2013). Die Gesamtaktivität der radioaktiven Abfälle ist in der Schachtanlage Konrad auf $5 \cdot 10^{18}$ Bq beschränkt. Mit der Inbetriebnahme des Endlagers ist vermutlich nicht vor Ende des Jahres 2021 zu rechnen. Die Betriebszeit des Endlagers ist nicht befristet. Diskutiert werden Betriebszeiten von ca. 30 Jahren.

Für wärmeentwickelnde Abfälle, zu denen u. a. konditionierte Brennelemente und verglaste Spaltprodukte mit minoren Aktiniden aus der Wiederaufbereitung gehören, soll nach derzeitigem Forschungsstand in Deutschland die Endlagerung im Wirtsgestein „Ton“ oder „Salz“ präferiert werden. Ein Salzstock, der in Bezug auf geologische Formation und Radionuklidrückhaltung zur Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle einen fortgeschrittenen Erforschungsstand hat, ist der Salzstock in Gorleben. Salz

führt aufgrund der hohen Leitfähigkeit die durch den radioaktiven Zerfall erzeugte Wärme verhältnismäßig rasch ab. Lokale Überhitzungen mit hohen thermisch induzierten Spannungen können daher leichter vermieden werden. Das Endlagermedium bietet ebenfalls Vorteile bzgl. der Abgrenzung des Endlagers zu wasserführenden geologischen Schichten. Der Kontakt mit wasserleitenden Erdschichten verursacht die Auflösung des Salzes, wobei jedoch primär leichter lösliche Salze aufgelöst werden (Subrosion). Schwerer lösliche wie Gips (Calciumsulfat) und tonige Bestandteile lagern sich an der Grenzfläche ab und bilden eine zunehmend wasserundurchlässige Schutzschicht, den Salzhut oder das Hutgestein. Des Weiteren führt die Fließfähigkeit des Salzes unter dem hohen Bergdruck und der erhöhten Temperatur im Salz selbst und durch den eingelagerten Abfall zu einer weitgehenden Verschließung der Hohlräume. Dieses Verhalten kann in starren Wirtsgesteinen wie zum Beispiel Granit nicht genutzt werden kann. Die geringe mittelfristige Stabilität erschwert die Offenhaltung technisch notwendiger Hohlräume und macht eine Rückholung aufwendiger. Gemäß den Sicherheitsanforderungen des BMUB muss in der Betriebsphase bis zum Verschluss der Schächte oder Rampen eine Rückholung der Abfallbehälter möglich sein /2-14/.

Eine Eignungsaussage zum Standort Gorleben wurde bisher noch nicht getroffen und kann erst nach abschließenden Sicherheitsanalysen auf Basis eines vollständig erkundeten Salzstockes innerhalb eines Planfeststellungsverfahrens gemäß § 9b AtG erfolgen. Zwischen dem 01.10.2000 und dem 01.10.2010 wurden im Bergwerk zur Erkundung des Salzstocks Gorleben nur noch Maßnahmen und Arbeiten durchgeführt, die das Bergwerk in einem betriebssicheren Zustand erhalten. Diese Maßnahmen schlossen dabei den Erhalt der bisherigen Investitionen und Arbeitsergebnisse ein, um die Möglichkeit einer Wiederaufnahme der Erkundungsarbeiten nach einer ergebnisoffenen Klärung offener Fragestellungen aufrecht zu erhalten. Im Oktober 2010 hat, der damalige Bundesumweltminister Norbert Röttgen (CDU) angeordnet, dass die Arbeiten unter Tage nach einem zehnjährigen Erkundungsstopp (Moratorium) wiederaufgenommen werden sollen. Am 30. November 2012 hat Bundesumweltminister Peter Altmaier (CDU) diese Entscheidung jedoch revidiert und bekannt gegeben, dass die Erkundungsarbeiten im Erkundungsbergwerk Gorleben ruhen. Mit dem Standortauswahlgesetz /2-24/ wurden nachfolgend neue Regelungen zur Auswahl eines Endlagerstandortes in Deutschland gesetzlich festgeschrieben

Die Schachtanlage Bartensleben in Morsleben diente der Kali- und Salzgewinnung, bevor sie 1971 zum Endlager für radioaktive Abfälle wurde. Bis 1998 wurden hier zunächst Abfälle aus Kernkraftwerken der DDR und später auch aus der BRD eingelagert. Das Bundesamt für Strahlenschutz hat die Stilllegung des Endlagers beantragt.

Die Schachtanlage Asse II bei Wolfenbüttel ist ein etwa 100 Jahre altes Kali- und Salzbergwerk. Das Helmholtz Zentrum München hatte das Bergwerk von 1965 bis 1992 im Auftrag des Bundesforschungsministeriums genutzt, um die Handhabung und die Lagerung von radioaktiven Abfällen in einem Endlager zu erproben. Zwischen 1967 und 1978 wurden in 125.787 Fässern 46.930 Kubikmeter radioaktive Abfälle eingelagert. Heute steht die Asse vor zwei großen Problemen: Zum einen dringen

Salzlösungen in das Bergwerk ein, zum anderen ist die Stabilität des Grubengebäudes gefährdet. Im September 2008 haben die beteiligten Ministerien vereinbart, die Asse zukünftig wie ein Endlager zu behandeln. Sie unterfällt nunmehr dem Atomgesetzt /2-6/. Zu Beginn des Jahres 2009 hat das BfS das Helmholtz Zentrum München als Betreiber der Asse abgelöst und hat nunmehr die Aufgabe, die Asse sicher stillzulegen. Als Betriebsgesellschaft hat das BfS die Asse-GmbH eingesetzt. Diese ist für sämtliche betriebliche Arbeiten, wie z. B. Zutrittslösungsmanagement, Firstspaltverfüllung und Strahlenschutz im Bergwerk zuständig. Der Bund ist zu 100 % Anteilseigner der Asse-GmbH.

Um den Problemen der Asse II entgegenzuwirken, wurden seitens des BfS die drei Stilllegungsoptionen Rückholung, Umlagerung in tiefere geologische Schichten und Vollverfüllung Grubenhohlräume betrachtet und verglichen. In Konsequenz stellt die vollständige Rückholung und Verbringung der Abfälle in ein geeignetes Endlager auf der Basis des heutigen Wissenstandes die beste Stilllegungsoption dar /2-10/. Stand von Wissenschaft und Technik für die Konditionierung der rückgeholten Abfälle aus der Asse II ist eine Konditionierung der Abfälle zur Erfüllung der Endlagerungsbedingungen für das Endlager Konrad. Gerade in Anbetracht einer solchen Umlagerung von radioaktiven Abfällen muss die Relevanz von messtechnischen Methoden in der Produktkontrolle überdacht werden, da Radionuklid- und Stoffdeklarationen, welche sonst auf Abfallgebindedokumentationen basieren, bei diesen umgelagerten Abfällen nicht durchführbar sind. Für die endgelagerten Abfälle in der Asse II besteht keine Abfalldokumentation, die den heutigen Anforderungen in einem Endlagerungsverfahren genügen würde. Messtechnische Verfahren zur radiologischen und stofflichen Charakterisierung sollte in Anbetracht der notwendigen Charakterisierung der rückzuholenden radioaktiven Abfälle aus der Asse II ein höherer Stellenwert eingeräumt werden.

2.3 Produktkontrolle radioaktiver Abfälle

Die Qualitätssicherung zur sachgerechten Endlagerung radioaktiver Abfälle wird als Produktkontrolle bezeichnet. Aufgabe der Produktkontrolle ist, die Einhaltung der Endlagerungsbedingungen sicherzustellen /1-1/. Die Endlagerungsbedingungen sind Resultat standortspezifischer Sicherheitsanalysen einer genehmigten Anlage. Im Rahmen der Verantwortung für den Betrieb des Endlagers hat das BfS hierbei die Aufgabe, die organisatorischen und administrativen Regelungen der Produktkontrolle zu definieren und die Endlagerfähigkeit von Abfallgebinden zu bestätigen (§ 9a, 23 AtG). An der Produktkontrolle sind neben dem BfS ebenso die atomrechtlichen Aufsichtsbehörden, die beauftragten Sachverständigen, die Abfallverursacher und die in ihrem Auftrag tätigen Dienstleistungsunternehmen sowie die Betreiber der Zwischenlager eingebunden.

Bei der Konditionierung radioaktiver Abfälle sind entsprechend /2-8/ nach Möglichkeit qualifizierte Verfahren anzuwenden. Ein Konditionierungsverfahren wird vom BfS qualifiziert, wenn die Durchführung der Vorbehandlung und Konditionierung so erfolgt, dass eine sichere und ordnungsgemäße Endlagerung der entstehenden Abfallprodukte bzw. Abfallgebinde angenommen werden kann. Die Qualifizierung von

Konditionierungsverfahren geschieht gemäß einem Ablaufplanverfahren (siehe Abb. 2.5). Ein Abfallverursacher bzw. Genehmigungsinhaber beantragt die Qualifizierung radioaktiver Abfälle und beschreibt die hierzu erforderlichen Konditionierungsschritte gemäß einem dem Antrag zugehörigen Ablaufplan. Die Zustimmung des BfS und der für den Genehmigungsinhaber verantwortlichen atomrechtlichen Aufsichtsbehörde geschieht durch eine Verfahrensqualifikation, in welcher das Konditionierungsverfahren bewertet wird. D. h. es erfolgt vor der Konditionierung eine kampagnenbezogene Verfahrensqualifikation durch das BfS, bei der ein Stichprobenumfang an einer zu einem Prüflos zusammengefassten Menge von Abfallgebinden bzw. Abfallprodukten festgelegt wird. Vor Ort erfolgt dann die Kontrolle gemäß den festgelegten Arbeits- und Prüfschritten des Prüffolge- oder Ablaufplanes.

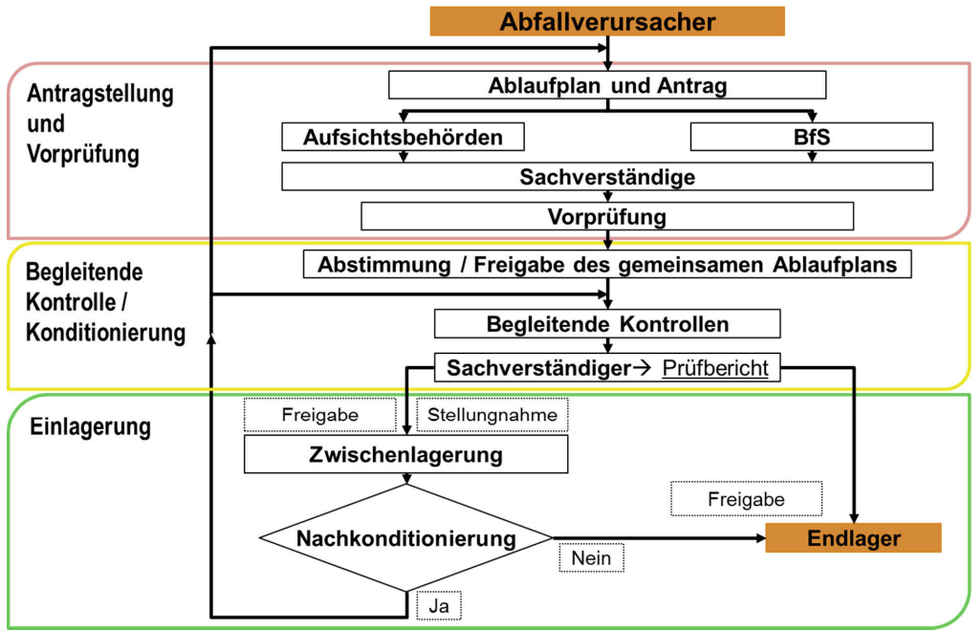


Abb. 2.5: *Ablauf der Produktkontrolle von Abfallgebinden aus kerntechnischen Einrichtungen für ihre Konditionierung, Zwischen- und Endlagerung.*

Für diese fachliche Bewertung und die Kontrollmaßnahmen während der Konditionierung bedient sich das BfS unabhängiger Sachverständiger wie dem TÜV Nord EnSys Hannover GmbH & Co. KG oder der Produktkontrollstelle (PKS) der Forschungszentrum Jülich GmbH. Auch die atomrechtlichen Aufsichtsbehörden bedienen sich für die Vor-Ort-Überwachung der Konditionierungsschritte unabhängiger Sachverständigenorganisationen wie den örtlich ansässigen technischen Überwachungs-Vereinen (TÜV). Nach der Durchführung der Konditionierung werden die Ergebnisse der Kontrollmaßnahmen durch die Sachverständigen in einem Prüfbericht niedergeschrieben. Dieser Prüfbericht ist Grundlage einer möglichen Zwischenlagerung oder definiert notwendige Nachkonditionierungsschritte, falls

endlagerrelevante Eigenschaften nicht eingehalten werden. Das BfS delegiert ebenfalls Aufgaben für den Betrieb des Endlagers Konrad und die Kontrollen an den Abfallgebinden beim Eingang am Endlager an Institutionen wie die Deutschen Gesellschaft zum Bau und Betrieb von Endlagern für Abfallstoffe mbH (DBE).

Der erfolgreiche Abschluss des Produktkontrollverfahrens besteht in der Bestätigung der Endlagerfähigkeit von Abfallgebinden durch das BfS. Eine solche endlagergerechte Qualifizierung von Abfallgebinden beruht auf begleitenden Kontrollen von Konditionierungsmaßnahmen, der stofflichen und radiologischen Charakterisierung radioaktiver Abfälle und der Einhaltung aller übrigen endlagerrelevanten Eigenschaften, zusammenfassend Kenngrößen genannt. Diese Kenngrößen sind sicherheitstechnische Anforderungen an Abfallgebinde und beziehen sich auf chemische, physikalische und biologische Eigenschaften der Abfallprodukte sowie auf die Verpackung der Abfälle.

Wie bereits im Unterkapitel 2.2 dargelegt, liegt in Deutschland allein für die Schachtanlage Konrad als Endlager für radioaktive Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung ein Planfeststellungsbeschluss vor. Basierend auf dem zu Grunde liegenden Planfeststellungsverfahren /2-1/ wurden zur Einhaltung der Schutzziele während und nach dem Endlagerbetrieb die Anforderungen an endzulagernde Abfälle /1-1/ und die Regelungen zur Produktkontrolle für die Schachtanlage Konrad definiert /1-2/1-3/. Folgende 14 endlagerrelevante Eigenschaften sind als Kenngrößen in der Produktkontrolle definiert und werden im Endlagerungsverfahren auf Einhaltung kontrolliert:

1. Gesamtaktivität des Abfallgebindes
2. Aktivität relevanter Radionuklide
3. Ortsdosisleistung an der Oberfläche und in 1 m bzw. 2 m Abstand
4. Oberflächenkontamination
5. Zusammensetzung des Rohabfalls
6. Qualität des Fixierungsmittels
7. Qualität des Abfallbehälters
8. Mengenverhältnisse Abfall/Fixierungsmittel/Wasser/Zuschlagstoffe
9. Durchmischung
10. Masse Abfallgebinde, Abfallprodukt oder innere Abschirmung
11. Abbinde- bzw. Produktzustand
12. Wassergehalt bzw. Restfeuchte
13. Thermisches Verhalten
14. Stapel- und Handhabbarkeit

Die Einhaltung dieser endlagerrelevanten Eigenschaften ist jedoch nicht gesondert von den übrigen zu bewerten. So ist eine höhere Qualität der Verpackung, z. B. eine störfallfeste Verpackung der Abfallbehälterklasse II (ABK II) nur dann zu erreichen, wenn der Abfallbehälter die erhöhten Barriereeigenschaften der Abfallbehälterklasse II erfüllt und der radioaktive Abfall im Inneren durch

Verfestigen, Einbinden oder Vergießen (Kenngrößen: Qualität des Fixierungsmittels, Durchmischung, Abbinde- bzw. Produktzustand) formstabil fixiert ist und zusätzlich in formstabil vergossenen Innenbehältern (z. B. Fässern) verpackt ist. Werden sämtliche dieser Kriterien an die Verpackung erfüllt, kann die Gesamtaktivität und die Aktivität relevanter Radionuklide im Abfallgebinde erhöht werden. Grundsätzlich besteht somit ein Zusammenhang zwischen Verpackungskonzept, dem Abfallproduktzustand, einzelnen endlagerrelevanten Kenngrößen und dem für eine Endlagerung zulässigen Aktivitätsinventar pro Abfallgebinde (siehe Abb. 2.6).

Bei der Produktkontrolle für das Endlager Konrad wird zwischen stofflichen und radiologischen Aspekte unterschieden /1-2/1-3/. Die radiologischen Aspekte der Produktkontrolle /1-2/ umfassen neben der radiologischen Charakterisierung der Abfälle die Prüfungen von Abfallbehältern, die Kontrolle an Abfallprodukten und Abfallgebinden, die für die Endlagerung erforderliche Dokumentation sowie die Qualifizierung von Konditionierungsmaßnahmen und die Festlegung begleitend durchzuführender Kontrollmaßnahmen.

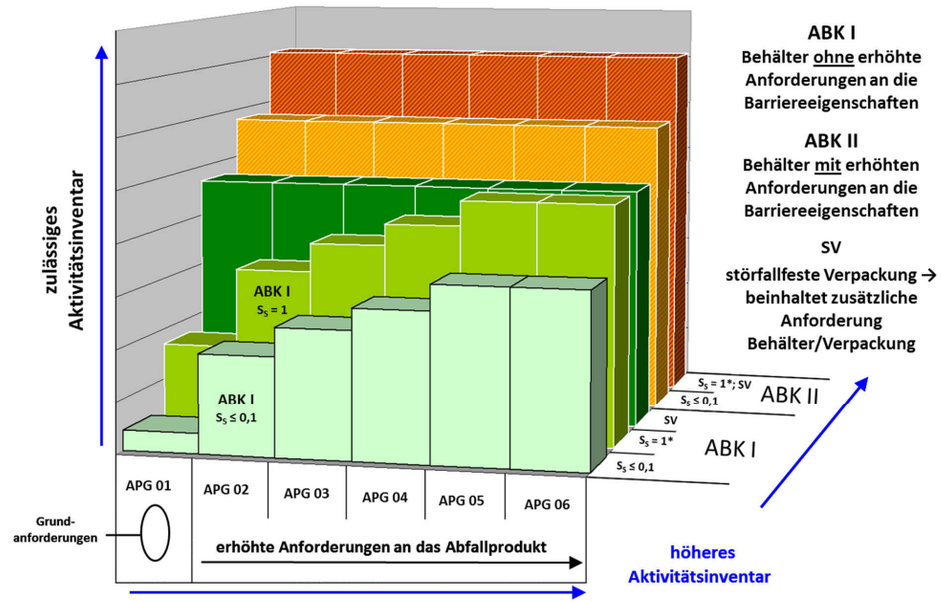


Abb. 2.6: *Zusammenhang zwischen Verpackungskonzept und dem zulässigen Aktivitätsinventar pro Abfallgebinde bei der Endlagerung in der Schachtanlage Konrad (Bildquelle: GNS mbH).*

Die stoffliche Produktkontrolle /1-3/ beinhaltet die Umsetzung der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis zur Endlagerung von radioaktiven Abfällen im Endlager Konrad und dient dem Schutz des Grundwassers. Die gehobene wasserrechtliche Erlaubnis ermöglicht es dem BfS, radioaktive Abfälle mit den darin enthaltenen nichtradioaktiven schädlichen Stoffen im Endlager Konrad unter Berücksichtigung von Beschränkungen endzulagern. Die genauen Beschränkungen unter denen die gehobene

wasserrechtliche Erlaubnis erteilt wurde /1-4/, werden in Anhang 4 des „Planfeststellungsbeschlusses für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerkes Konrad in Salzgitter“ /2-1/ aufgeführt. Hier ist zu entnehmen, dass die Endlagerung von radioaktivem Inventar nur zulässig ist, solange die aufgeführten Genehmigungswerte für 94 grundwasserrelevante Elemente und Verbindungen (Auszug in Tab. 2.2) unterschritten werden und zwei Nebenbestimmungen eingehalten werden. Nebenbestimmung 1 legt die fortlaufende Erfassung und Bilanzierung der in den Abfallgebinden enthaltenen nichtradioaktiven schädlichen Stoffen nach Art und Menge fest. Hierbei sind die Massen dieser einzelnen Stoffe anzugeben. Nebenbestimmung 2 macht es dem BfS zur Auflage, der zuständigen Wasserbehörde, dem Niedersächsischen Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz (NLWKN), die jährlichen Daten über die tatsächliche Einlagerung in Form eines Jahresberichts vorzulegen.

Die in Nebenbestimmung 1 geforderte Bilanzierung bei der Einlagerung ist für die im Anhang 4 des Planfeststellungsbeschlusses Konrad /2-1/ aufgeführten Stoffe sowie für nicht aufgeführte, jedoch wassergefährdende Stoffe verpflichtend.

Tab. 2.2: *Beispielhafter Auszug von Genehmigungswerten der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis zur Endlagerung von radioaktiven Abfällen im Endlager Konrad, zitiert aus dem Anhang 4 des Planfeststellungsbeschlusseses Konrad /2-1/.*

Soff bzw. Stoffgruppe	**Genehmigungswert**
Biphenyle	1,72 g
Platin	10,3 g
Beryllium	24,5 kg
Quecksilber	43,7 kg
Selen	48,7 kg
Arsen	337 kg
Gold	1.470 kg
Cäsium	3.870 kg
Lithium	66.300 kg
Cadmium	182.000 kg
Siliziumoxid (SiO_2)	743.000 kg
Sulfat (SO_4)	1.310.000 kg
Kupfer	2.630.000 kg

Wassergefährdende Stoffe sind nach der Definition des § 62 Absatz 3 Wasserhaushaltsgesetzes (WHG) in der seit dem 1. März 2010 geltenden Fassung /2-18/ feste, flüssige und gasförmige Stoffe, die geeignet sind, dauernd oder in einem nicht nur unerheblichen Ausmaß nachteilige Veränderungen der Wasserbeschaffenheit herbeizuführen. Der § 62 WHG definiert, dass ein Endlager, in welchem wassergefährdende Stoffe lagern, so beschaffen sein und so errichtet, unterhalten, betrieben und stillgelegt werden muss, dass eine nachteilige Veränderung der Eigenschaften von Gewässern nicht zu besorgen ist.

In der Verwaltungsvorschrift wassergefährdender Stoffe (VwVwS) /2-19/ wird die Wassergefährdung von Stoffen näher bestimmt, teils als Stofflisten der Klassen, teils als vorgeschriebene Einstufungsverfahren. Diese Vorschrift leitet sich aus § 19g Abs. 5 des Wasserhaushaltsgesetzes in der vor dem 1. März 2010 geltenden Fassung ab. Gemäß Verwaltungsvorschrift werden wassergefährdende Stoffe in drei Wassergefährdungsklassen unterteilt. Die Wassergefährdungsklasse (WGK) 1 beinhaltet schwach wassergefährdende, die WGK 2 wassergefährdende und die WGK 3 stark wassergefährdende Stoffe /2-19/.

In der an das NLWKN zu übermittelnden Bilanzierung ist es nicht notwendig, wassergefährdende Stoffe, die als Spurenverunreinigung im Abfall enthalten sein können, aufzuführen. Gemäß der Begründung zu Anhang vier des Planfeststellungsbeschlusses Konrad wurde festgelegt:

„Bei den Mengenermittlungen und der Bilanzierung unberücksichtigt bleiben die Stoffe, die in geringen Anteilen je Gebinde oder Charge als Spurenverunreinigung enthalten sein können. Als Spurenverunreinigung sind sowohl Stoffe gemäß I.1 bis I.4 als auch weitere Stoffe zu bewerten, deren Mengen nicht quantifizierbar sind. Die Spurenverunreinigungen dürfen nur in Mengen auftreten, dass nachteilige Veränderungen hierdurch im oberflächennahen Grundwasser mit Sicherheit ausgeschlossen sind. /2-1/“

Zur Gewährleistung der Unterschreitung der Genehmigungswerte sowie der Erfüllung beider Nebenbestimmungen der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis ist es erforderlich, dass jedes Abfallgebinde bezüglich der stofflichen Zusammensetzung zunächst zu beschreiben und bei wasserrechtlicher Relevanz zu deklarieren ist. Dabei sind Abfallbehälter, Abfallprodukt und ggf. sonstige Abfallbestandteile wie Innenbehälter oder Verfüllung zu berücksichtigen. Des Weiteren sind die in den radioaktiven Abfällen enthaltenen wassergefährdenden Stoffe gemäß einem für alle Ablieferungspflichtigen einheitlichen Verfahren zu beschreiben und ggf. zu deklarieren. Hierzu hinterlegt das BfS die chemische Zusammensetzung sämtlicher relevanter Materialien in einer Stoffliste. Die Beschreibung von Materialien geschieht über einen Stoffvektor, der die anteiligen Elemente und Verbindungen eines Materials aufschlüsselt.

Die Stoffliste ist Teil einer zentral geführten abfallspezifischen Stoffdatenbank und enthält alle zu beschreibenden und ggf. zu deklarierenden Bestandteile der endzulagernden Abfallgebinde. Hierzu gehören auch Abfallbehälter bzw. Verpackungen, welche in einer vereinheitlichten Behälterliste zusammengeführt werden. Für die qualitative und quantitative Beschreibung der endzulagernden Abfallgebinde gemäß dieser Stoffliste sind die Abfallverursacher bzw. Ablieferungspflichtigen und Konditionierer verantwortlich. Hierbei sind die unterschiedlichen Materialien und Stoffe eines Abfallgebindes mit ihren jeweiligen Massen anzugeben, soweit sie die in der Stoffliste angegebenen Beschreibungsschwellenwerte überschreiten. Der durch den Beschreibungsschwellenwert festgelegte Massenanteil reglementiert, ab welcher Menge ein Stoff als Bestandteil eines Abfallgebindes beschrieben werden muss und definiert somit die Genauigkeit der stofflichen Charakterisierung. Sollten einzelne Materialien oder Stoffe, welche der

Abfallverursacher bzw. Ablieferungspflichtige in seinem Abfallgebinde vorfindet, nicht in der Stoffliste aufgeführt sein, so ist dieser verpflichtet, die Aufnahme dieser Materialien oder Stoffe in die Stoffliste beim BfS zu beantragen. Der Beschreibungsschwellenwert ist dabei in der Regel für Neuabfälle 1 % der Abfallgebindebruttomasse. Für Altabfälle, d.h. zum Zeitpunkt der Rechtskraft des Planfeststellungsbeschlusses Konrad bereits verarbeitete und verpackte Abfälle, liegt der Beschreibungsschwellenwert bei 5 % der Abfallgebindebruttomasse.

Beide Beschreibungsschwellenwerte werden in der Stoffliste einzeln geführt. Die Beschreibungsschwellenwerte können für solche Stoffe, die über ein hohes Gefährdungspotential für die Qualität des oberflächennahen Grundwassers verfügen, auch geringer sein. Das heißt, wenn für einen Stoff ein Deklarationsschwellenwert < 1 % ermittelt wurde, so muss dieser auch als Beschreibungsschwellenwert übernommen werden, um garantieren zu können, dass das Grundwasser nicht nachteilig verändert wird. Für Altabfälle wird dieser geringere Wert dann wiederum mit fünf multipliziert /2-4/. Dieser Faktor wurde in Abstimmung mit Abfallverursachern als „best estimate“ für die Bestimmung der stofflichen Zusammensetzung von Altabfällen ohne unverhältnismäßige Erhöhung der Strahlenbelastung festgelegt /2-4/. Bei dieser Abstimmung zwischen BfS und Abfallverursacher war jedoch ein zerstörungsfreies Analyseverfahren zur stofflichen Charakterisierung nicht entwickelt. Bei einer erfolgreichen Entwicklung müssten die bei der Abstimmung relevanten Kriterien neu gewichtet werden.

Als Altabfall sind radioaktive Abfälle zu verstehen, der zum Zeitpunkt der Bestandskraft der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis (Beschlüsse des Bundesverwaltungsgerichts vom 26. März 2007, bekanntgegeben am 03. April 2007) bereits konditioniert bei den Abfallverursachern oder bei Dritten im Sinne von § 78 StrlSchV /2-12/ lagert.

Der Deklarationsschwellenwert gibt den Massenanteil eines schädlichen Stoffes an, bei dessen Überschreitung der betroffene Stoff bei der Endlagerung bilanziert wird. Nur bei einer Bilanzierung eines schädlichen Stoffes würde der gemäß Planfeststellungsbeschluss genehmigte Wert anteilsmäßig ausgeschöpft. Die Deklarationsschwellenwerte sind auf der Basis rechnerischer Nachweise abgeleitet /2-4/. Hierbei wird eine Auflösung der radioaktiven Abfälle im jeweiligen Tiefenwasser und einsetzende Verdünnung durch Dispersion und Diffusion während des Transports durch die Lithosphäre in die Biosphäre unterstellt. Die Durchführung solcher rechnerischer Nachweise ist in dem Abschlussbericht „Ermittlung von Art und Menge chemotoxischer Stoffe in allen Arten radioaktiver Abfälle und Bewertung ihrer Freisetzung im Hinblick auf das Schutzziel des Wasserhaushaltsgesetz“ von der Firma Buchheim Engineering dargelegt /2-25/.

Der Deklarationsschwellenwert dient als Indikator dafür, ob ein Bestandteil eines Abfallgebindes als gefährlich im wasserrechtlichen Sinne einzustufen ist. Er stellt damit die Grenze zwischen den gemäß der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis zulässigen Spurenverunreinigungen, für die der sichere Ausschluss einer schädlichen Veränderung des oberflächennahen Grundwassers im rechnerischen Nachweis gezeigt

wurde, und einem endzulagernden und zu bilanzierenden Stoff dar. Ein exemplarischer Auszug von Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwerten aus der Stoffliste des BfS ist in Tab. 2.3 aufgeführt.

Tab. 2.3: *Beispiele für Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwerte zur Erfassung und Bilanzierung nichtradioaktiver schädlicher Stoffe im Endlagerungsverfahren Konrad /1-3/.*

Stoff	**Beschreibungsschwellenwert [Massen-% pro Abfallgebindebruttomasse]**		**Deklarationsschwellenwert [Massen-% pro Abfallgebindebruttomasse]**	
	Neuabfall	**Altabfall**	**Neuabfall**	**Altabfall**
Cäsium	1	5	5	5
Lithium	1	5	1	5
Quecksilber	1	5	1	5
Cadmium	1	5	1	5
Zink	1	5	1	5
Kupfer	1	5	-	-
Nickel	1	5	1	5
Blei	1	5	1	5
Arsen	1	5	1	5
Uran	1	5	1	5
Kobalt	1	5	25	25
Eisen	1	5	-	-

2.4 Zerstörungsfreie Charakterisierungsverfahren

Die Überprüfung der Charakterisierung radioaktiver Abfälle ist Teil des im vorigen Kapitel beschriebenen Produktkontrollverfahrens. Die Charakterisierung basiert auf zerstörungsfreien und zerstörenden Analyseverfahren. In Abhängigkeit des zur Anwendung kommenden Verfahrens bedingen die Verfahren eine repräsentative Probeentnahme. Bei bereits konditionierten Abfällen ist eine solche Probeentnahme oft schwierig. Ist eine Probeentnahme durchführbar, resultiert hieraus meist eine Strahlenexposition, da bei den verschiedenen Stoffströmen eine vollständige Automatisierung schwer umsetzbar ist. Selbst bei einer vollautomatischen Probeentnahme stellt sich jedoch immer die Frage der Repräsentativität der Probe. Bei der Mehrheit der radioaktiven Abfälle sind die Aktivität und der Gehalt an chemotoxischen Substanzen heterogen in den Abfällen verteilt. Das radiologische Gefährdungspotential wird oft durch kleinste Massen determiniert, die meist in einer Matrix fixiert sind.

Das nachfolgende Beispiel soll die besondere Herausforderung bzgl. der Repräsentativität einer Probeentnahme bei radioaktiven Abfällen verbildlichen. Die Aktivität eines einzelnen Korns bestehend aus ^{60}Co mit einer Korngröße von nur 350 µm hätte beispielsweise eine Aktivität von 8,4 GBq. Die maximal zulässige Aktivität in einem Endlagerbehälter mit einem Bruttovolumen von 7,4 m^3 beladen mit brennbaren radioaktiven Abfallprodukten beträgt für die Endlagerung in der Schachtanlage Konrad

5 GBq. Das im Abfallbehälter enthaltene Korn ^{60}Co würde somit die Endlagerungseignung des beschriebenen Abfallgebindes überschreiten. Zudem ist das Auffinden im Rahmen einer Probenahme zufallsbehaftet. Zerstörungsfreie Prüfverfahren, die auf eine Probeentnahme verzichten, bieten hier deutliche Vorteile. In Bezug auf die Anwendung zerstörungsfreier Prüfverfahren sind die zu erhebenden Daten zur Charakterisierung in vier Kategorien zu unterteilen:

- geometrische Form,
- strukturelle Beschreibung (physikalische Eigenschaften z. B. Druckfestigkeit, Dichteverteilung),
- radiologisches Inventar und
- stoffliches Inventar (chemische Eigenschaften z. B. Reaktionsfähigkeit, Chemotoxizität).

Vorzugsweise sollten somit zerstörungsfreie Analyseverfahren an Abfallprodukten, d. h. an verarbeiteten radioaktiven Abfällen, verpackt in Innenbehältern, eingesetzt werden. Die mit radioaktivem Abfall gefüllten Innenbehälter, typischerweise Stahlfässer mit einem Nutzvolumen von 200 oder 400 Litern, werden anschließend in einen endlagergerechten Abfallbehälter eingesetzt und konditioniert. Die endlagergerechten Abfallbehälter können kubische oder runde Behälter aus Stahlblech, Stahlbeton oder Gusswerkstoffen sein. Stahlfässer sind im Endlagerungsverfahren Konrad und den meisten internationalen Endlagerungsverfahren in tiefen geologischen Schichten /2-21/2-22/ nicht als Endlagerbehälter zulässig. Da die abschließende Konditionierung der Abfallgebinde einen Verguss oder eine formstabile Fixierung der Abfallprodukte im Endlagerbehälter beinhalten kann, ist es zweckmäßig, zunächst die radiologische und stoffliche Charakterisierung der Abfallprodukte abzuschließen und sich diese durch das BfS qualifizieren zu lassen, bevor Abfallgebinde beladen und vergossen werden. Als Fixierungsmittel wird meist Beton, Bauschutt oder Sand verwendet. Die Messung von bereits konditionierten Abfallgebinden ist zwar ebenso möglich, jedoch unpräziser. Grundsätzlich gilt, je größer ein Abfallbehälter ist, desto schwerer ist er mit zerstörungsfreien Prüfverfahren zu charakterisieren. Bedingt ist dies durch die exponentielle Abschwächung in Abhängigkeit der Wegstrecke für eindringende Neutronen oder Gamma-Quanten und der exponentielle Abschwächung der aus dem Abfallgebinde emittierten Gamma-Quanten.

Die zerstörungsfreien Analyseverfahren lassen sich in Verfahren zur radiologischen, stofflichen und strukturellen Charakterisierung unterscheiden. Bei einer radiologischen Charakterisierung wird das Radionuklidinventar eines Abfallgebindes beschrieben. Hierdurch kann eine Verifikation des seitens der Ablieferungspflichtigen deklarierten Radionuklide und Aktivitäten erfolgen. Eine stoffliche Charakterisierung gibt Aufschluss über die Elemente und Verbindungen, aus denen ein Abfallgebinde besteht. Hierbei müssen chemotoxische Inhaltsstoffe im Abfallgebinde deklariert werden. Die strukturelle Charakterisierung gibt die Dichteverteilung in einem Abfallgebinde wieder. Die wichtigsten unter den jeweiligen Teilkomplex fallenden Analyseverfahren für die Charakterisierung radioaktiver Abfälle sind in Abb. 2.7 aufgeführt.

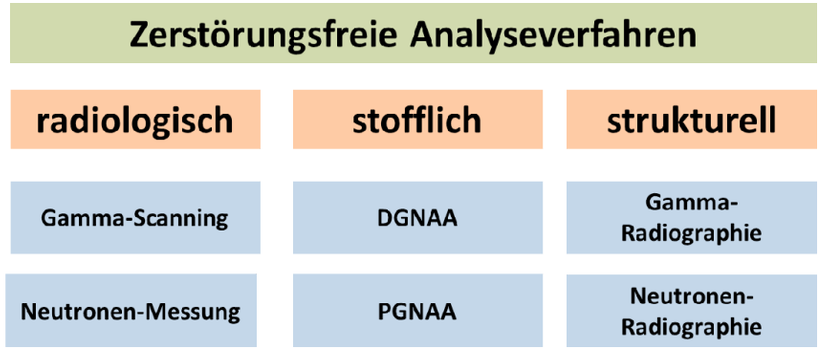


Abb. 2.7: *Einteilung der zerstörungsfreien Analyseverfahren, die für die Charakterisierung radioaktiver Abfälle in Frage kommen.*

In den nachfolgenden zwei Unterkapiteln werden die Grundlagen der strukturellen und radiologischen Analyseverfahren dargestellt. Diese beiden Analyseverfahren sind im Gegensatz zu stofflichen Prüfverfahren Stand von Wissenschaft und Technik. In Kapitel 2.5 wird dargestellt, welche besonderen Anforderungen bei einem zerstörungsfreien Analyseverfahren zur stofflichen Charakterisierung vorliegen.

Zu den Verfahren der radiologischen Charakterisierung von Abfallprodukten gehören verschiedene Varianten des Gamma-Scannings und der Neutronen-Messung. Die stoffliche Charakterisierung kann durch eine Neutronen-Aktivierungs-Analyse und die Detektion prompter und verzögerter Gamma-Quanten erfolgen. Grundlage sämtlicher radiologischer und stofflicher Charakterisierungen ist die Bestimmung der Nettomasse des Abfalls bzw. die mittlere scheinbare Dichte der Abfallmatrix. Diese Datenerhebung kann durch strukturelle Charakterisierungsverfahren wie die Gamma- oder Neutronen-Radiographie erfolgen.

2.4.1 Strukturelle Charakterisierungsverfahren

Strukturelle Charakterisierungsverfahren basieren auf dem Prinzip der Radiographie. Bei der Radiographie werden Objekte mittels ionisierender Strahlung durchstrahlt und das Abbild aufgenommen. Wesentliche Bestandteile einer Radiographieanlage sind dabei eine Strahlungsquelle und ein Detektorsystem. Das zu untersuchende Objekt befindet sich zwischen diesen Komponenten. Zur Verarbeitung der Detektordaten zu Bildern sind zudem noch Auswertungselektronik und Auswertungssoftware nötig. Man unterscheidet in radiographische Verfahren basierend auf Neutronen- oder Gamma-Strahlung.

In Abb. 2.4 sind zwei Radiogramme einer Fotokamera dargestellt. Die Gamma-Radiographie ermöglicht hauptsächlich eine Detektion von schweren Materialien wie Metallen, während bei der Neutronen-Radiographie besonders gut leichte Materialien nachgewiesen werden können. Zur Charakterisierung radioaktiver Abfallprodukte ist durch die Anwendung beider Verfahren ein synergetischer Informationsgewinn für eine nachfolgende radiologische oder stoffliche Charakterisierung möglich.



***Abb. 2.8**: Vergleich zweier Radiographien, Neutronenradiographie (links) und Gammaradiographie (rechts) /2-21/.*

2.4.1.1 Gamma-Radiographie

Die Gamma-Radiographie (GR) ist ein bildgebendes Transmissionsverfahren, bei dem ein Abfallbehälter mittels einer kollimierten intensiven Strahlenquelle durchleuchtet wird. Als Quellen der Photonenstrahlung dienen entweder radioaktive Isotope oder Linearbeschleuniger. Die Photonenenergie ist bei den Radioisotopen begrenzt, typische Energien sind zum Beispiel für eine Co-60 Quelle 1173 keV und 1332 keV. Mit Linearbeschleunigern können wesentlich höhere Energien erzielt werden, so werden bei großen Anlagen beispielsweise Photonenenergien (Bremsstrahlung) im GeV-Bereich erreicht.

Der Unterschied zur der in der medizinischen Diagnostik oder in der Materialprüfung eingesetzten konventionellen Röntgenbildaufnahmetechnik liegt in der Verwendung von einem oder mehreren Gamma-Detektoren anstelle von Röntgenfilmen. Die durch das Untersuchungsobjekt geschwächte Gammastrahlung der Transmissionsquelle wird mit den Detektoren diskret (digital) abgetastet. Die gemessenen Transmissionsprofile werden in ein Radiogramm umgerechnet, das die mittlere Dichte des Abfallbehälters inkl. Abfallprodukt entlang dem Strahlweg darstellt (siehe Abb. 2.9). Die Radiogramme liefern Informationen über die geometrischen Abmessungen von inneren Strukturen, den Befüllungsgrad und die vertikale Verteilung der mittleren Dichte (Profildichte) sowie der entsprechenden Abschwächungskoeffizienten.

In Abb. 2.10 ist beispielsweise ein Radiogramm von einem 200-l-Abfallfass mit vier hochdruckverpressten Pellets dargestellt. Die mittlere Profildichte ergibt sich aus den mittleren Gamma-Abschwächungskoeffizienten der Elemente entlang des Strahlwegs. Auf der Grundlage der GR an einem Abfallprodukt können das tatsächliche Volumen des Abfalls und die für Korrekturen notwendige Gamma-Abschwächung bestimmt werden. Zusätzlich können Höhenpositionen für tomographische Messungen festgelegt werden /2-11/.

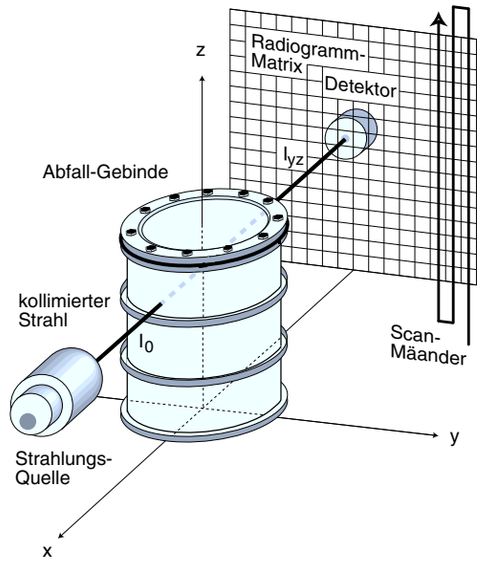


Abb. 2.9: *Prinzip der digitalen Radiographie (Bildquelle: RCM/TUM).*

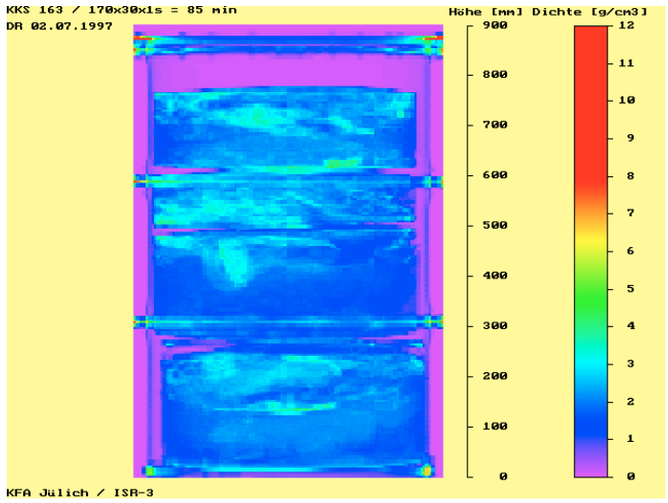


Abb. 2.10: *Am Forschungszentrum Jülich aufgenommenes digitales Radiogramm eines Abfallfasses mit ca. 90 % Füllgrad und vier kompaktierten Pellets. Messzeit: 85 min /2-11/.*

2.4.1.2 Transmissions-Computertomographie

Die Transmissions-Computertomographie (TCT) ist ein bildgebendes Verfahren, bei dem ein Abfallbehälter mittels einer kollimierten intensiven Strahlenquelle durchstrahlt wird (siehe Abb. 2.11). Gemessen wird die Transmission der Strahlung, wobei das Messobjekt hinsichtlich der Strahlrichtung sowohl gedreht als auch verschoben wird. Die Transmission der Gammastrahlung kann ggf. mit dem gleichen Detektorsystem, das bei der GR eingesetzt wird, nachgewiesen werden. Aus der Vielzahl der

aufgenommenen Transmissionsdaten wird mit Hilfe eines iterativen mathematischen Algorithmus die räumliche Verteilung der Dichte in Schnittebenen berechnet und in Form eines Tomogramms bildlich dargestellt. Im Vergleich zu der GR besitzt die TCT einen höheren Informationsgehalt. Die Tomogramme liefern durch ihre Dreidimensionalität detailliertere Informationen über die Abfallzusammensetzung, z. B. innere Behälter, mittlere und lokale Dichte, Hohlräume, Vorhandensein von Flüssigkeiten und abschirmende Strukturen /2-11/. In Abb. 2.12 ist ein Tomogramm einer Betonscheibe mit verschiedenen Prüfkörpern dargestellt. Die Prüfkörper können aufgrund ihrer Dichte einzelnen Materialklassen zugeordnet werden.

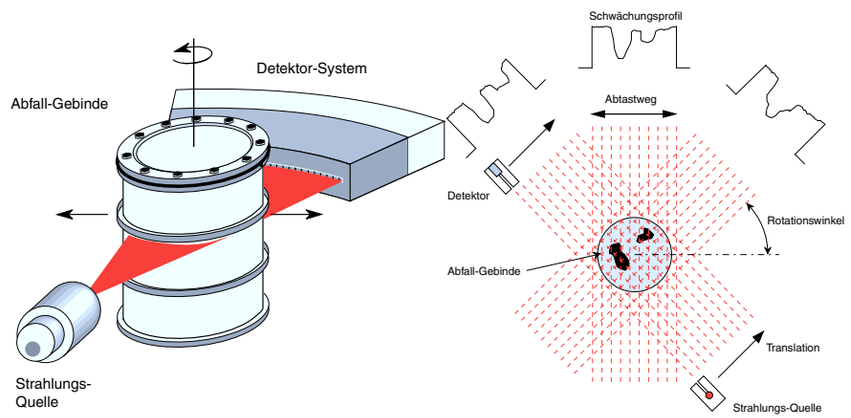


Abb. 2.11: *Prinzip der Transmissions-Computertomographie. Das zu untersuchende Abfallfass wird in einer definierten Höhenposition zwischen Quelle und Detektor bewegt und nach einer Translationsbewegung um einen bestimmten Winkel gedreht. Aus den dabei aufgenommenen Schwächungsprofilen wird das zugehörige Tomogramm mit einem mathematischen Rekonstruktionsverfahren berechnet. (Bildquelle: RCM/TUM)*

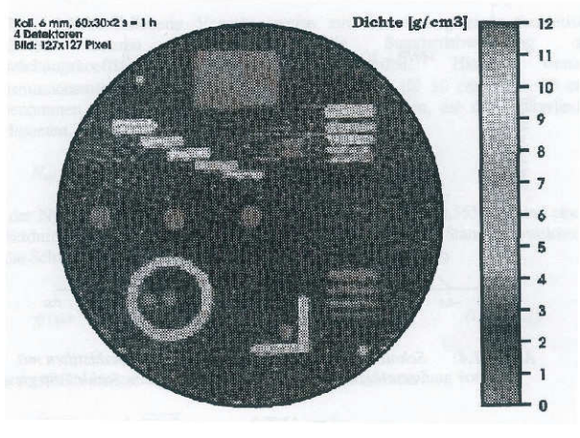


Abb. 2.12: *TCT-Tomogramm einer Betonscheibe mit verschiedenen Bauteilen (Kunststoff, Stahl, Blei, Luft). Die Messzeit betrug eine Stunde (Bildquelle: Forschungszentrum Jülich GmbH).*

2.4.1.3 Neutronen-Radiographie

Alternativ zur Gamma-Radiographie können für eine strukturelle Charakterisierung von Abfallgebinden auch Neutronen zur Durchleuchtung genutzt werden. Der prinzipielle Unterschied ist, dass Neutronen anders wechselwirken als Gamma-Quanten. Materialien, die z. B. viel Wasserstoff enthalten, streuen Neutronen besonders stark. Einige Materialien können von Neutronen besser als von Gamma-Quanten durchdrungen werden, weshalb die radiographischen Verfahren in Abhängigkeit der Elementarzusammensetzung eines Abfallbehälters einen unterschiedlichen Informationsgehalt erbringen (siehe Abb. 2.13).

Als Neutronenquellen können Radioisotope, Neutronengenerator oder Forschungsreaktoren dienen. Die Detektion von Neutronen ist schwieriger als die von Photonen und stellt höhere Ansprüche an das Detektorsystem. Einen bedeutenden Einfluss auf das Verfahren hat die Energie der Quellneutronen, so werden z. B. vor allem kalte Neutronen dazu genutzt, um die Verteilung von wasserstoffhaltigen Materialien in Objekten festzustellen, z. B. die Verteilung von Schmieröl in Verbrennungsmotoren /1-5/.

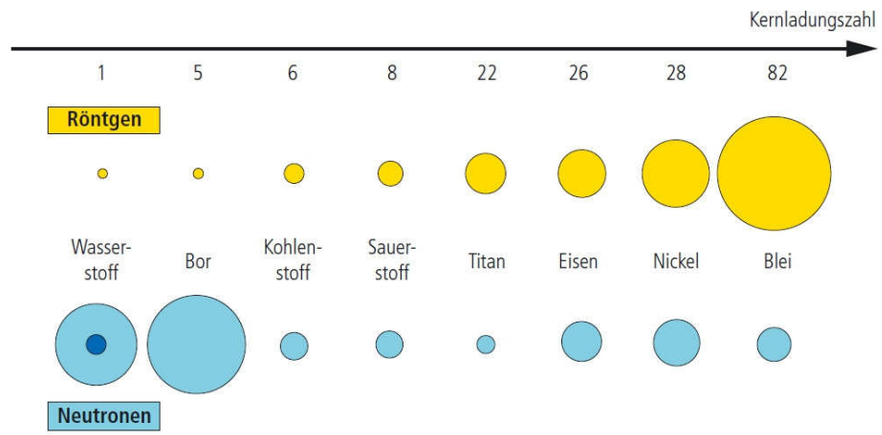


Abb. 2.13: *Vergleich der Beeinflussung von Neutronen und Gammas. Bei Letzteren steigt die Abschwächung mit höherer Massenzahl, während Neutronen vor allem durch leichte Materialien beeinflusst werden /2-20/.*

2.4.2 Radiologische Charakterisierungsverfahren

Zu den Prüfverfahren der radiologischen Charakterisierung zählen die Emissions-Computertomographie und verschiedene Varianten des Gamma-Scannings. Die Verfahren bedingen teilweise eine Voruntersuchung zur strukturellen Charakterisierung der Abfallgebinde durch die Digitale Radiographie oder die Transmissions-Computertomographie. Grundlage sämtlicher radiologischer Charakterisierungen ist die Bestimmung der Nettomasse des Abfalls bzw. der mittleren scheinbaren Dichte der Abfallmatrix. Hierfür sind die zuvor beschriebenen strukturellen Analyseverfahren zielführend. Die Nettomasse des radioaktiven Abfalls ergibt sich als Differenz zwischen der gesamten Masse des Abfallprodukts bzw. Abfallgebindes und der Masse des leeren Abfallbehälters. Bei konventionellen Gamma-Scan-Verfahren wird die mittlere scheinbare Dichte der Matrix benötigt, um die durch das Matrixmaterial verursachte Abschwächung der Gammastrahlung zu korrigieren. Die mittlere scheinbare Dichte wird wie folgt berechnet: Formelabschnitt (nächster)

$$\rho_{scheinbar} = \frac{m_{Nettoabfallmasse}}{v_{Abfallbehälter}} \tag{2.1}$$

wobei $m_{Nettoabfallmasse}$ und $v_{Abfallbehälter}$ die Nettomasse des Abfalls und das Gesamtvolumen des Abfallbehälters darstellen. Die tatsächliche mittlere Dichte des Abfalls ergibt sich durch:

$$\rho_{Abfall} = \frac{m_{Nettoabfallmasse}}{v_{Abfall}} \tag{2.2}$$

wobei ν_{Abfall} das tatsächliche Volumen des Abfalls darstellt. Je nach Befüllungsgrad des Abfallbehälters kann die tatsächliche Dichte erheblich höher sein als die scheinbare Dichte. Unter der Annahme einer homogenen Aktivitätsverteilung hängt die Güte der Abschwächungskorrektur von der Dichtehomogenität der Matrix und dem Befüllungsgrad des Abfallbehälters ab. Für den einfachsten Fall, dass der Abfallbehälter vollständig befüllt ist, ist $\rho_{scheinbar}$ gleich ρ_{Abfall}. Ist zusätzlich die Dichte der Matrix homogen, führt die Schwächungskorrektur zu korrekten Aktivitätswerten. Für den Fall, dass das Gebinde nur teilweise befüllt ist ($\nu_{Abfall} < \nu_{Abfallbehälter}$), führt die Schwächungskorrektur zu einer Unterschätzung der Aktivität. Diese Unterschätzung ist umso gravierender, je geringer der Befüllungsgrad und je niedriger die Gamma-Energie der für die Analyse verwendeten Gamma-Quanten eines Radionuklids ist.

2.4.2.1 Gamma-Scanning

„Gamma-Scanning-Verfahren gehören zu den am häufigsten bei der Qualitätskontrolle an radioaktiven Abfällen eingesetzten zerstörungsfreien Nachweismethoden. Ziel der Gamma-Scanning-Verfahren ist die Bestimmung der in Abfallprodukten bzw. –gebinden enthaltenen Gesamtaktivität aller gammaspektrometrisch nachweisbaren Radionuklide bzw. deren ortsabhängige Aktivitätskonzentration. Die von einem Untersuchungsobjekt emittierte Gammastrahlung wird mittels hochauflösenden HPGe-Detektors nachgewiesen (siehe Abb. 2.16)“ /2-11/. Bei der Charakterisierung radioaktiver Abfälle werden unterschiedliche Gamma-Scanning-Verfahren eingesetzt. Beim Integralen Gamma-Scanning (IGS) erfasst ein Detektor das Gesamtvolumen des Untersuchungsobjekts (siehe Abb. 2.15, links). Beim segmentierten Gamma-Scanning (SGS) erfasst ein kollimierter Detektor nur einzelne Teilvolumina des Untersuchungsobjekts (siehe Abb. 2.15, rechts). Auf die Emissions-Computertomographie (ECT) wird im nächsten Unterkapitel eingegangen.

„Allen Gamma-Scanning-Verfahren ist gemeinsam, dass die energetische Lage der in dem aufgenommenen Gamma-Spektrum nachgewiesenen Photopeaks eine eindeutige Identifizierung der vorhandenen Radionuklide erlaubt“ /2-11/. Die Nettozählrate der nachgewiesenen Photopeaks ist ein Maß für die in dem Abfallbehälter enthaltene Nuklidaktivität. Bei konventionellen Gamma-Scan-Verfahren (IGS oder SGS) wird die mittlere scheinbare Dichte der Matrix benötigt, um die durch das Matrixmaterial verursachte Abschwächung der Gammastrahlung zu korrigieren. Hierfür wird das Gesamtvolumen des Abfallbehälters verwendet.
Die tatsächliche mittlere Dichte des Abfalls ist jedoch vom Befüllungsgrad abhängig. Bei einem geringeren Befüllungsgrad des Abfallbehälters ist die tatsächliche Dichte höher als die scheinbare Dichte. Für diesen Fall führt die Schwächungskorrektur zu einer Unterschätzung der Aktivität. Die Präzision der mittels Abschwächungskorrektur durchgeführten Aktivitätsbestimmung einer homogenen Aktivitätsverteilung hängt beim Gamma-Scanning somit von der Dichtehomogenität der Matrix und dem Befüllungsgrad des Abfallbehälters ab. Um die Güte der Aktivitätsbestimmung zu erhöhen, kann mittels des transmissionskorrigierten segmentierten Gamma-Scannings (T-SGS) die Schwächung der Strahlung im

untersuchten Objekt besser korrigiert werden. Die Bestimmung der Nuklidaktivitäten wird von IGS über SGS zu T-SGS somit immer präziser. In Abb. 2.13 ist der im Forschungszentrum Jülich im Einsatz befindliche Gamma-Scanner GERNOD II abgebildet.

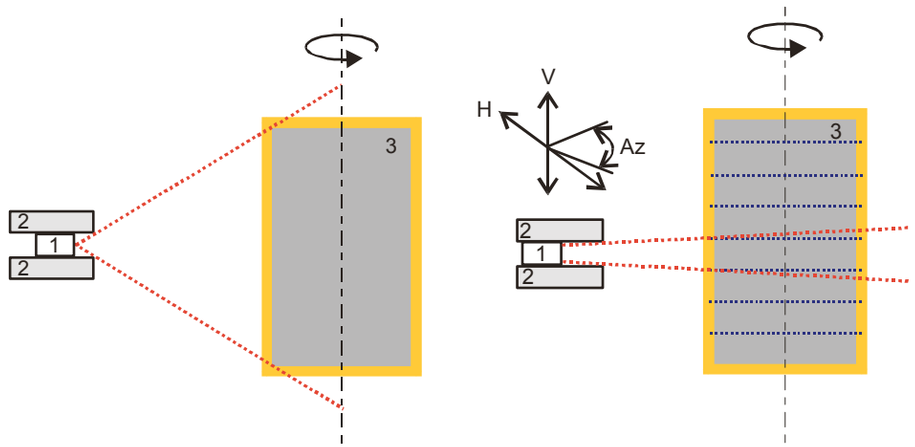


Abb. 2.15, links: *Schematische Darstellung des Integralen Gamma-Scannings (IGS)* ***Rechts:*** *Schematische Darstellung des Segmentierten Gamma-Scannings (SGS). 1: HPGe-Detektor, 2: Kollimator, 3: Abfallbehälter, V: vertikale Bewegung, H: horizontale Bewegung, Az: azimutale Bewegung /2-11/.*



Abb. 2.16: *Gamma-Scanner GERNOD II zur Routineuntersuchung radioaktiver Abfallfässer. (Bildquelle: Forschungszentrum Jülich)*

2.4.2.2 Emissions-Computertomographie

„Bei der Emissions-Computertomographie (ECT) wird die vom radioaktiven Inventar des Abfallbehälters emittierte Gammastrahlung mit einem oder mehreren kollimierten hochauflösenden HPGe-Detektoren nachgewiesen. Der Bewegungsablauf bei der Aufnahme der Emissions-Daten entspricht dabei dem einer TCT-Untersuchung, d. h. das Fass wird sowohl senkrecht zu den Detektoren verfahren, als auch mit Hilfe

eines Drehtellers gedreht. Aus den Emissionsdaten wird mit Hilfe eines iterativen mathematischen Algorithmus unter Berücksichtigung der durch mittels TCT ermittelten Dichteverhältnisse die Aktivitätsverteilung für die nachgewiesenen Gammastrahler berechnet und als Aktivitätsschnittbild (Emissions-Tomogramm) dargestellt /2-11/. In Abb. 2.14 ist ein Emissions-Tomogramm eines 200-l-Fasses dargestellt, welches die Inhomogenität der ^{60}Co-Aktivität verbildlicht. Das analysierte Fass weist in der Fassmitte die höchste massenspezifische Aktivität des Radionuklids ^{60}Co auf. Anhand der mittels TCT bestimmten Abschirmung von Gamma-Strahlung innerhalb eines Abfallbehälters kann mit dem nachgeschaltetem ECT-Verfahren die Aktivität und die Aktivitätsverteilung von Radionukliden in einem Abfallbehälter am genausten bestimmt werden.

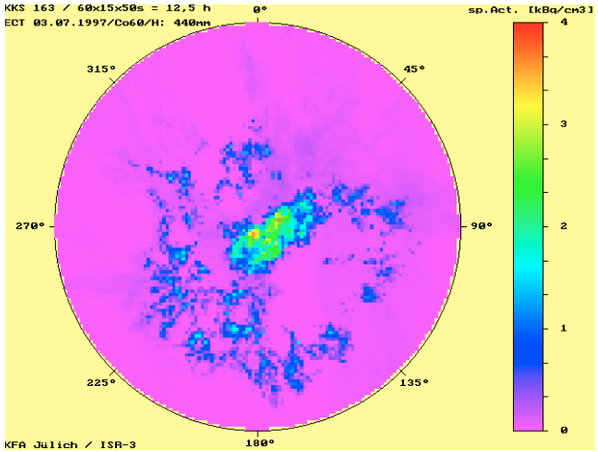


Abb. 2.14: Am Forschungszentrum Jülich aufgenommenes ECT-Tomogramm der Co-60-Aktivität in einer Schicht (Höhe: 440 mm) eines 200-l-Abbfallfasses. Messzeit: 12,5 h /2-11/.

2.4.2.3 Neutronen-Messungen

„Die Neutronen-Messung ist ein zerstörungsfreies Messverfahren, bei dem die freigesetzten Neutronen aus der Spontanspaltung bzw. der induzierten Spaltung der Actinoiden nachgewiesen werden. Bei den Actinoiden tritt als radioaktiver Umwandlungsprozess die Spontanspaltung aus dem Grundzustand, die mit der Emission von 2 bis 3 prompten Neutronen verbunden ist, in Konkurrenz zu der Alpha-Umwandlung auf. Aus der Wechselwirkung zwischen den Alpha-Teilchen und den in der Abfallmatrix vorhandenen leichten Elementen ($Z < 30$) entstehen durch (α,n)-Reaktionen interferierende Neutronen. Die Neutronen-Emissionsrate einer (α,n)-Reaktion hängt von der chemischen Umgebung der Actinoiden ab. Für fluoridhaltige Verbindungen ist sie höher als für sauerstoffhaltige. Bei der Charakterisierung radioaktiver Abfälle werden die folgenden Neutronen-Messverfahren eingesetzt:

- Passive Integrale Neutronen-Messung (PINM),
- Passive Koinzidenz Neutronen-Messung (PKNM),
- Passive Multiplizität Neutronen-Messung (PMNM),
- Passive Segmentierte Neutronen-Messung (PSNM) und

- Aktive Neutronen-Messung (ANM)“/2-11/.

Der radioaktive Zerfall durch Spontanspaltung ist charakteristisch für Actinoiden mit gerader Massenzahl (Pu-238, Pu-240, Cm-242, Cm-244, Cf-252, etc.). Die Neutronenemissionsrate liegt wesentlich höher als diejenige aus der Spontanspaltung der Actinoiden mit ungerader Massenzahl (U-235, Pu-239, Am-241, etc.). Die Messung der aus der Spontanspaltung emittierten Neutronen wird Passive Neutronen-Messung (PNM) bezeichnet.

Durch Beschuss mit thermischen bzw. epithermischen Neutronen lassen sich die Actinoiden mit ungerader Massenzahl spalten (induzierte Spaltung). Dagegen fordert die induzierte Spaltung der Actinoiden mit gerader Massenzahl hochenergetische Neutronen (E_n> 1 MeV). Für ein bestimmtes Isotop liegt die Zahl der durch induzierte Spaltung freigesetzten Neutronen höher als die durch Spontanspaltung. Die Messung der aus der induzierten Spaltung emittierten Neutronen wird als Aktive Neutronen-Messung (ANM) bezeichnet.

Der Nachweis von Neutronen lässt eine Aussage über das Vorhandensein von Actinoiden in den untersuchten Abfällen zu. Ist der Nuklidvektor des Abfalls bekannt, kann aus der Neutronenzählrate auf die Masse oder Aktivität der Actinoiden geschlossen werden. Eine Quantifizierung der Menge an Spontanspaltern ist nur möglich, wenn die Matrixeffekte (Moderation und Absorption von Neutronen sowie (α,n)-Interferenzreaktionen) und die räumliche Verteilung der Neutronenemitter bekannt sind. Die aus einem radioaktiven Abfallgebinde emittierten Neutronen werden mittels für Neutronen sensitiven Detektoren nachgewiesen. Dies können z. B. BF_3 oder ^{3}He-Proportionalzählrohre sein, die von einem PE-Mantel umhüllt sind. Je nach Messbedingungen und Anforderungen (z. B. Gamma-Dosisleistung und Sensitivität) werden verschiedene Typen von Detektormaterialien eingesetzt. Der PE-Mantel führt durch Moderation der Neutronen zu einer Erhöhung der Neutronenzählrate. Mit einer zusätzlichen Bleiabschirmung um das Detektionssystem herum kann der Raumuntergrund unterdrückt werden.

2.5 Anforderungen an ein Analyseverfahren zur stofflichen Charakterisierung

Die stoffliche Produktkontrolle /1-3/ ergänzt die in der Produktkontrolldokumentation spezifizierte radiologische Produktkontrolle /1-2/. Sie beschreibt die Überprüfung der stofflichen Zusammensetzung von radioaktiven Abfällen. Hierzu wurde ein Konzept in Form der Deklaration über Stoffvektoren vorgenommen. Die Auflistung dieser Stoffvektoren geschieht in einer zentral vom BfS geführten abfallspezifischen Stoffdatenbank, der sogenannten Stoffliste. Gemäß dem BfS-Dokument SE-IB-43/10 zur Stoffliste /2-4/ soll die weitreichende Bandbreite der in der Stoffliste geführten Stoffe und Materialien eine Beschreibung des Abfallgebindes ermöglichen, ohne dass hierfür stoffliche Analysen vorzunehmen sind. Hierzu zitiert das genannte Dokument aus den Erläuterungen zur Nebenbestimmung 1 aus der wasserrechtlichen Erlaubnis, befindlich in Anhang 4 des Planfeststellungsbeschlusses Konrad /2-1/:

„Zur Erfüllung der in Nebenbestimmung 1 dem Betreiber aufgegebenen Pflicht zur Überwachung, Erfassung und Bilanzierung der Stoffe ist eine stoffliche Analyse der Gebindeinhalte nicht erforderlich."

Aus diesem Textabschnitt kann jedoch nicht geschlossen werden, dass eine stoffliche Analyse im Endlagerungsverfahren grundsätzlich ausgeschlossen ist. Die Erforderlichkeit stofflicher Analysen von Abfallgebinden wird hier alleinig für den Betreiber des Endlagers, das BfS bzw. eine mit dieser Verantwortung delegierten Institution, negiert. Dies bedeutet nicht, dass innerhalb des Endlagerungsverfahrens nicht der nachweispflichtige Abfallverursacher bzw. Ablieferungspflichtige sich stoffliche Analyseverfahren zu Nutze machen kann, um den Informationsgehalt über seine Abfälle zu erhöhen und somit eine verlässlichere Stoffdeklaration durchzuführen. Das BfS äußert sich zu zerstörungsfreien Prüfverfahren in den stofflichen Aspekten der Produktkontrolle /1-3/ wie folgt:

„Für die Prüfung von ungenügend dokumentierten Altabfällen erlaubt die zerstörungsfreie Prüfung mittels bildgebender Verfahren wie Digitaler Radiographie (DR) oder Transmissions-Computer-Tomographie (TCT) eine erste Beurteilung der Gebindeinhalte."

Das BfS weist auf die Anwendung zerstörungsfreier Analyseverfahren hin und nennt die Verfahren, die nach Stand der Technik einen Erkenntnisgewinn ermöglichen würden. Die genannten Prüfverfahren geben jedoch alleinig die ortsabhängige Information des Abschirmverhaltens gegenüber Gamma-Strahlung eines Probekörpers wieder, welche durch die Ordnungszahl sowie die Dichte des Materials definiert wird. Hier würde ein Analyseverfahren zur stofflichen Charakterisierung ggf. kombiniert mit den genannten Prüfverfahren die stoffliche Beschreibung von Problemabfällen erheblich verbessern, weil hierdurch eindeutig die Elementverteilung in einem Probekörper ortsabhängig bestimmt werden kann.

Ebenfalls ist möglich, dass eine im Produktkontrollverfahren einbezogene Sachverständigenorganisation stoffliche Analysen an Rohabfällen oder Abfallprodukten fordert. Dies wäre z. B. der Fall, wenn ein Abfallverursacher aufgrund mangelnden Dokumentationsgrads von bereits konditionierten Abfallgebinden keine plausible, vollständige und prüffähige Stoffdeklaration vorlegen kann. Innerhalb der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis wird eine Kontrolle der vom Abfallverursacher durchgeführten Stoffdeklaration eindeutig vorgesehen.

„Die unter I.1 bis I.4 genannten Stoffe sind mit den jeweiligen Mengen vom Abfallerzeuger in Abfalldatenblättern schriftlich anzugeben. Die Möglichkeit einer Kontrolle durch BfS ist jedoch vorzusehen."

Mit diesen Kontrollmöglichkeiten sind keine Kontrollen an endlagerfähigen konditionierten Abfallgebinden bei der Endlagerung zu verstehen, da zur Endlagerung selbst nur Abfallgebinde abgerufen werden, die die Endlagerungsbedingungen im Anschluss an die durchgeführte Produktkontrolle erfüllen. Endlagerungsfähige konditionierte Abfallgebinde müssen somit bereits stofflich beschrieben und geprüft sein. Ein Analyseverfahren an fertig konditionierten Konradcontainern, Betonbehältern oder

Gussbehältern ist aus diesem Grunde nicht zielführend. Eine Kontrollmöglichkeit muss vorher im Produktkontrollverfahren zur Anwendung kommen und kann entweder auf einer Dokumentationsprüfung oder einem Prüfverfahren basieren.

Ein stoffliches Analyseverfahren zur Verifikation bestehender Stoffdeklarationen oder zur Ermittlung kompletter stofflicher Deklarationen muss in die Produktkontrolle integriert werden. Für eine erfolgreiche Integration eines stofflichen Analyseverfahrens im Endlagerungsverfahren Konrad wird anhand der derzeit üblichen Konditionierungsprozesse ein Anforderungsprofil erstellt. Anhand dieses Kriterienkatalogs soll eine zielgerichtete Erforschung und Entwicklung der Technik durchgeführt werden.

Anforderung 1: **Repräsentativität der Analyse bei großvolumigen Abfallbehältern**

Ziel ist, mit dem heranzuziehenden Analyseverfahren alle gängigen Abfallbehälter, die auf dem Weg zur Konditionierung zu Abfallgebinden genutzt werden, zu untersuchen. Das bedeutet, das Messverfahren sollte befähigt sein, konditionierte Abfallprodukte wie z. B. gefüllte Abfallfässer, Wannen oder verpresste Pellets zu prüfen. Dabei müssen Problembereiche, z. B. tiefere Regionen des Abfallbehälters oder Bereiche hinter einer Abschirmung mit hoher Dichte, auch erfasst werden können. Das Analyseverfahren muss nicht zwangsläufig befähigt sein, fertig konditionierte Abfallgebinde wie Konradcontainer, Granulat-Beton-Abschirmbehälter (GBA) oder Gussbehälter am Endlagerstandort zu analysieren, da diese Abfallgebinde bereits für eine Endlagerung qualifiziert sind.

Anforderung 2: **Zerstörungsfreies Analyseverfahren**

Bei noch nicht konditionierten Abfallströmen ist eine plausible Herleitung einer Stoffdeklaration anhand von Ein- und Ausgangsbilanzierungen oder vereinzelten chemischen Analysen grundsätzlich möglich. Im Gegensatz dazu ist bei Altabfällen eine Plausibilitätsbetrachtung oder eine Stoffdeklaration in Abhängigkeit der Dokumentationslage ggf. problematisch oder nicht erreichbar. Hierbei ist zu beachten, dass sowohl das Öffnen von Fässern mit Altabfall für eine visuelle Kontrolle, als auch eine zerstörende Prüfung wie z. B. durch Bohrkernentnahme zu einer Deklaration der zu untersuchenden Abfälle als Neuabfall führen. An Neuabfälle sind deutlich restriktivere Beschreibungsschwellenwerte geknüpft, wodurch zerstörende Analyseverfahren die Anforderung an die Stoffdeklaration erhöhen. Die zerstörungsfreie Methode hat insofern auch diesen Vorteil. Ebenfalls vorteilhaft bei zerstörungsfreien Analyseverfahren ist, dass hierbei auf eine repräsentative Probenahme an verschlossenen Abfallprodukten, die auf Grund der Heterogenität des Materials nicht oder nur mit immensem Aufwand möglich ist, verzichtet werden kann. Ein Öffnen der verschlossenen Abfallbehälter kann zudem zur Verbreitung von Kontaminationen führen, weswegen geöffnete Abfallbehälter mit einem geeigneten kostspieligen Verfahren wieder verschlossen werden müssen.

Anforderung 3: **Genauigkeit und Sensitivität**

Das Analyseverfahren sollte so ausgelegt sein, dass sämtliche wasserrechtlich relevanten Elemente und Verbindungen zu identifizieren und zu quantifizieren. Die Stoffliste des BfS /2-4/ listet die für die Identifizierung notwendigen Stoffe auf. Des Weiteren enthält sie die Beschreibungsschwellenwerte, ab welchem Massenanteil der Bruttoabfallmasse eine Beschreibung durch den Abfallverursacher bzw. Ablieferungspflichtigen verpflichtend ist. Diese Schwellenwerte definieren die geforderte Sensitivität bzw. die Nachweisanforderungen an ein Analyseverfahren im Endlagerungsverfahren Konrad. Die Bezugsgrößen der Schwellenwerte können eine Summe von Abfallprodukten, Abfallgebinden oder eine Abfallcharge sein. Bei einem Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwert für einen wassergefährdenden Stoff von einem Prozent der Bruttomasse eines 500 kg schweren Fasses müsste ein stoffliches Analyseverfahren an dem Fass z. B. minimal 5 kg (Neuabfall) bzw. 25 kg (Altabfall) des jeweiligen Stoffes nachweisen.

Anforderung 4: **Zunahme der Aktivität durch das Analyseverfahren und Sekundärabfall**

Gemäß dem Abfallminimierungsgrundsatz sollte das Analyseverfahren keine oder nur geringfügig Sekundärabfälle erzeugen. Beruht das Analyseverfahren auf der Bestrahlung radioaktiver Abfälle mit ionisierender Strahlung, so sollte die Zunahme der Aktivität durch das Analyseverfahren vernachlässigbar zur Aktivität der Abfälle sein.

Anforderung 5: **Validierung für verschiedene Matrices**

Konditionierte radioaktive Abfälle können in unterschiedlichen Matrices (Beton, Bitumen, Zementstein, Asche, Salz etc.) und mit verschiedenen Heterogenitätsgraden und Dichten vorliegen. Das stoffliche Analyseverfahren muss deshalb für die unterschiedlichen Matrices validiert werden. Mögliche Störeinflüsse bzw. Matrixeffekte müssen identifiziert und quantifiziert werden. Dieser Nachweis muss durch reale Proben, die die Bandbreite der späteren Anwendung abdecken, geführt werden.

Anforderung 6: **Prüfdauer**

Zu qualifizierende Abfallchargen bestehen oft aus einer großen Stückzahl von Abfallprodukten. Die Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwerte sind massenspezifisch und können auf die Abfallmasse einer Charge von Abfallprodukten, eine einzelne Abfallgebindemasse oder die Abfallgebindemasse einer gesamten Charge bezogen werden. Damit durch ein stoffliches Analyseverfahren ein realitätsnahes Bild von einer Abfallcharge erzeugt wird, sollte eine möglichst große Anzahl von Abfallprodukten bzw. Abfallmasse in einer vertretbaren Zeit analysiert werden. Hierfür ist es erforderlich, die Prüfdauer für ein Abfallprodukt so gering wie möglich anzusetzen.

Anforderung 7: **Qualifizierung des Analyseverfahrens**

Damit die Ergebnisse des Analyseverfahrens bei der Produktkontrolle verwendet werden können, muss entweder die Anwendung individuell in jeder einzelnen Entsorgungskampagne oder das Analyseverfahren kampagnenunabhängig durch eine Sachverständigenorganisation geprüft und durch das BfS qualifiziert werden. Eine kampagnenabhängige Qualifizierung bedeutet, dass die Anwendung des Analyseverfahrens nur für die in der konkreten Kampagne zu konditionierenden Abfälle mit ihrer spezifischen Abfallcharakteristik qualifiziert wird. Das Analyseverfahren kann z. B. für eine Kampagne von zementierten Altabfällen durch einen Sachverständigen geprüft und als abdeckend für eine Stoffdeklaration bewertet werden. Auf Grundlage dieser gutachterlichen Bewertung kann das BfS das Analyseverfahren für diese Konditionierungskampagne qualifizieren. Die würde aber keine Anwendbarkeit auf andere z.B. bituminierte Abfallkontingente gestatten.

Anhand dieses Kriterienkatalogs sind die primären Zielgrößen an ein stoffliches Analyseverfahren zusammenfassend: eine repräsentative Untersuchung des gesamten Abfallvolumens, ein möglichst abdeckender Bestimmungsbereich von wassergefährdenden Elementen und Verbindungen, die Reduktion der Strahlenexposition des Betriebspersonals im Vergleich zu alternativen Prüfmethoden sowie eine Kostenminimierung für den Konditionierer bzw. Abführungspflichtigen.

Am Ende dieser Arbeit muss die Frage beantwortet werden, ob das MEDINA-Analyseverfahren, welches für den konkreten Anwendungsfall der stofflichen Analyse von Abfallprodukten entwickelt wurde, den hier dargelegten Kriterienkatalog erfüllen kann, bzw. welche Entwicklungen noch zu tätigen sind, damit nicht erfüllte Kriterien abgedeckt werden. Das Akronym **MEDINA** steht für **M**ulti-**E**lement-**D**etection based on **I**nstrumental **N**eutron **A**ctivation. Physikalisch basiert das MEDINA-Messverfahren auf der ergänzenden Kombination der Prompt-Gamma-Neutron-Aktivierungs-Analyse (engl. PGNAA: Prompt-Gamma-Neutron-Activation-Analysis) und der Neutronen-Aktivierungs-Analyse (engl. DGNAA: Delayed-Gamma-Neutron-Activation-Analysis), welche im nachfolgenden Kapitel beschrieben wird.

Kapitel 3

Stand von Wissenschaft und Technik in der Neutronen-Aktivierungs-Analyse

Formel-Kapitel (nächstes) Abschnitt 1

Zusammenfassung

Das Kapitel fasst für die Entwicklung des MEDINA-Analyseverfahrens den relevanten Stand von Wissenschaft und Technik in der Neutronen-Aktivierungs-Analyse (NAA) zusammen. Es beginnt mit der Vorstellung der ersten wissenschaftlichen Experimente und theoretischen Überlegungen, welche die Grundlage der NAA bilden. Hierauf aufbauend werden die physikalischen Grundlagen erläutert.

Durch den Neutroneneinfang eines Atomkerns geht dieser in einen angeregten Zustand über. Bei der Abregung kommt es zur Emission von prompter und/oder verzögerter Gamma-Strahlung, anhand derer ein Isotop eindeutig identifiziert werden kann. Somit kann mittels der gammaspektrometrischen Messung der durch Neutronenbeschuss induzierten Strahlung die Elementaranalyse einer Probe durchgeführt werden. Für die Elementquantifizierung einer Probe müssen Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmungseffekte berücksichtigt werden, die im Kapitel diskutiert werden. Die Durchführung der NAA bei Kleinproben im Grammbereich mittels in Forschungsreaktoren erzeugten Neutronen ist in der Praxis erprobt und Stand der Technik. Vereinzelt wird die NAA auch als zerstörungsfreies Analyseverfahren bei großvolumigen Objekten angewandt. Um den Stand von Wissenschaft und Technik darzulegen, werden die Forschungen in diesem Bereich und deren Entwicklungsstand aufgeführt. Manche dieser Messverfahren haben sich mittlerweile bewährt und werden industriell angewandt.

3.1 Historische Entwicklung

Durch den Beschuss von Bor, Magnesium und Aluminium mittels α-Teilchen produzierten die Eheleute Irène und Frederic Joliot-Curie im Jahr 1934 radioaktive Stickstoff-, Silicium- und Phosphorisotope. Somit gelangen ihnen erstmals die Herstellung und der Nachweis radioaktiver Isotope aus stabilen Elementen. Für die Entdeckung der künstlichen Radioaktivität wurden sie 1935 mit dem Chemienobelpreis ausgezeichnet. Unverzüglich nach diesen Entdeckungen stellte sich die Frage, ob sich allein α-Teilchen als mögliche Projektile zur Erzeugung künstlicher Radionuklide eignen.

Angeregt durch den erbrachten Nachweis von künstlichen Kernumwandlungen und der Entdeckung des Neutrons durch James Chadwick im Jahr 1932 wandte sich Enrico Fermi 1934 der Experimentalphysik zu. Er untersuchte die Erzeugung künstlicher Radioaktivität mittels Neutronenbeschusses. Der damalige Nachteil der geringen Neutronenquellstärke konnte seiner Meinung nach dadurch kompensiert werden, dass Neutronen keine elektrische Ladung aufweisen und somit für Kernreaktionen keine Potentialbarriere durchdringen müssen. Das den Atomkern umgebende Coulomb-Feld stellt für Neutronen, im Gegensatz zu α-Teilchen, kein Hindernis dar. Des Weiteren interagieren Neutronen kaum mit den Elektronen der Atomhülle, was höhere Reichweiten der Neutronenstrahlung bedingt. Beide Vorzüge resultieren in einer größeren Wahrscheinlichkeit für Kernkollisionen und hieraus induzierten Kernreaktionen im Vergleich zu dem Beschuss mit geladenen Teilchen /3-1/. Fermi erhielt für seine Arbeiten über Kernreaktionen durch Neutronenstrahlung im Jahr 1938 den Nobelpreis für Physik. Er erkannte, dass Kernumwandlungsprozesse wesentlich effektiver ablaufen, wenn die von einer Quelle emittierten hochenergetischen Neutronen stark abgebremst werden. Schnelle Neutronen übertragen bei Stoßprozessen mit Atomkernen, welche thermische Energien aufweisen, solange Energie, bis ihre gesamte überschüssige Energie abgegeben ist. Diesen Vorgang nennt man Thermalisierung, die Neutronen bezeichnet man nun als thermalisiert bzw. thermisch /3-1/. Fermis Arbeit über die Neutronen-Aktivierung mittels thermischer Neutronen war Grundlage für die spätere Entdeckung der Kernspaltung durch Otto Hahn und Fritz Strassmann im Jahre 1939.

Die umfangreichen Untersuchungen von Fermi und seinen Mitarbeitern zeigten, dass nahezu alle Elemente durch Neutronenstrahlung aktiviert werden können. Diesen Umstand setzte György de Hevesy im Jahr 1936 erstmals zu analytischen Zwecken ein, indem er mittels Neutronen-Aktivierungs-Analyse 0,1 Ma % Dysprosium (Dy) in einem Gemisch seltener Erden nachwies /3-2/. Dabei bestrahlte er seine Proben mit einer Radium-Beryllium-Neutronenquelle (Ra-Be-Quelle). Das Prinzip der Verzögerten-Gamma-Neutronen-Aktivierung-Analyse (engl. DGNAA: Delayed-Gamma-Neutron-Activation-Analysis) ist es, Zielelemente zu aktivieren und die Zerfallsprodukte anhand der Energie ihrer durch die Halbwertszeit charakterisierten verzögerten emittierten Strahlung zu identifizieren, wobei deren Zerfallsrate für eine quantitative Bestimmung der einzelnen Radionuklide genutzt werden kann. Die zu analysierende Probe wird für eine selektive Bestrahlungsdauer einem Neutronenfluss ausgesetzt und dann nach einer Abklingphase gammaspektrometrisch ausgemessen. Durch eine geeignete Wahl der

Aktivierungs- und Abklingzeiten werden spektrale Interferenzen reduziert und es lässt sich steuern, ob man bevorzugt Aktivierungsprodukte mit kurzen oder langen Halbwertszeiten messen kann.

Über die Emission einer stark durchdringenden Gamma-Strahlung bei Neutroneneinfangreaktionen in wasserstoffhaltigen Materialien hat zuerst Lea im Jahr 1934 berichtet /3-3/. Dies war der erste Nachweis von prompter Gamma-Strahlung. Heute wissen wir, dass es sich dabei um Strahlung mit der Energie von 2223,3 keV gehandelt hat, welche bei der Kernreaktion $^{1}H(n,\gamma)^{2}H$ emittiert wird. Prompte Gamma-Strahlung wird unmittelbar von dem durch den Neutroneneinfang angeregten Kern emittiert. Da die kinetische Energie bei eingefangenen thermischen Neutronen vernachlässigbar ist, stellt die als prompte Gamma-Strahlung aus dem Kern emittierte Energie die freiwerdende Bindungsenergie des Neutrons bei der Bildung des radioaktiven oder stabilen Isotops des bestrahlten Elements dar – im Fall des von Lea durchgeführten Versuchs die Bindungsenergie des Neutrons bei der Bildung von Deuterium. Aktiviert man einen Probenkörper durch Neutronenbeschuss und identifiziert einzelne Aktivierungsprodukte durch die Energie der aus dem angeregten Kern emittierten prompten Gamma-Strahlung, so wird dieses Verfahren als Prompt-Gamma-Neutronen–Aktivierungs-Analyse (engl. PGNAA: Prompt-Gamma-Neutron-Activation-Analysis) bezeichnet.

Nachdem die kernphysikalischen Grundlagen der Neutronen-Aktivierungs-Analyse mittels prompter oder verzögerter Gamma-Emissionen bekannt waren wurden die benötigten Komponenten zwecks stetiger Optimierung der Analysetechnik weiterentwickelt. Zunächst wurden (α,n)-Quellen (z. B. ^{241}Am-^{9}Be) oder Spontanspaltungsquellen (z. B. ^{252}Cf) als Neutronenquellen eingesetzt. Später ermöglichten Kernreaktoren hohe Neutronenflüsse, die überwiegend aus thermischen Neutronen bestehen. Neutronengeneratoren geringer Baugröße nutzen die Fusionsreaktionen zwischen Deuterium und Deuterium (D-D) sowie Deuterium und Tritium (D-T), um schnelle Neutronen zu erzeugen und bieten den großen Vorteil einer handhabbaren ein- und ausschaltbaren Neutronenquelle.

Zur Detektion der emittierten Gamma-Strahlung wurden zuerst Auslösezählrohre (Geiger-Müller-Zähler) verwendet. Aufgrund der anliegenden Hochspannungsquelle kommt es bei Auslösezählrohren zu einer Gasverstärkung im Inneren der Messkammer. Die durch ionisierende Strahlung erzeugten Ladungsträger werden im Spannungsfeld des Detektors beschleunigt und führen zu der Ionisierung weiterer Gasatome. Das elektrische Signal dieser Ladungsträgerlawine besitzt keine Proportionalität zur Energie der einfallenden Strahlung. Auslösezählrohre sind somit nicht zur Energiebestimmung geeignet. Elemente konnten nur aufgrund ihrer Halbwertszeit bestimmt werden. Erst die Entwicklung von Szintillationszählern ermöglichte die Messung von diskreten Gamma-Spektren. Als Detektor wird hierbei ein Einkristall z. B. aus NaJ, das mit Thallium (Tl) dotiert wurde, mit nachfolgendem Fotomultiplier verwendet. Die Absorption eines einfallenden Gamma-Quants erzeugt im Kristall einen Lichtblitz, der auf der Fotokathode des Multipliers Elektronen in einer Anzahl auslöst, die der absorbierten Gamma-Energie proportional ist. Der bedeutendste Durchbruch in der NAA geschah in den späten sechziger Jahren durch die Entwicklung moderner Germanium-Halbleiterdetektoren. Diese besaßen eine Energieauflösung, die

über 20-mal höher war als NaJ (Tl) Szintillationszähler, allerdings mit dem Nachteil einer geringeren Effizienz (Nachweisempfindlichkeit). Die Entwicklung schnellerer Verstärker und Analog-zu-Digital-Konvertern (engl. ADC: analog digital converter) sowie die Digitalisierung des Signals ermöglichte es, Messsysteme mit minimierten Totzeitverlusten zu bauen, um somit Messungen mit hohen Zählraten durchführen zu können.

Am Massachusetts Institute of Technology (MIT) wurden Ende der 60er und Anfang der 70er Jahre erste systematische Reihen von Messungen prompter Gamma-Spektren für 75 Elemente durchgeführt. Die gewonnenen Daten führten zu der „Chalk River-Compilation“, einer Datenbank für die Prompt-Gamma-Strahlung als Folge des Neutroneneinfangs /3-4/. Dieses Tabellenwerk war bis Anfang des 21. Jahrhunderts die einzige Referenz für Spektroskopiedaten auf dem Gebiet der PGNAA. Erst verschiedene Förderprogramme der internationalen Atomenergieorganisation IAEA (International Atomic Energy Agency) mit dem Ziel der Zusammenstellung einer neuen Datenbank mit aktualisierten Wirkungsquerschnitten für die PGNAA zugrunde liegenden Kernreaktionen erbrachte im Jahr 2004 einen entscheidenden Fortschritt /3-5/. Eine durch die IAEA überarbeitete und erweiterte Fassung mit dem Titel „Database of Prompt Gamma Rays from Slow Neutron Capture for Elemental Analysis” erschien im Januar 2007 /3-6/. Die Datenbank beinhaltet für alle natürlichen Elemente und das künstliche Radionuklid Technetium-99 die folgenden Daten: Isotopenzusammensetzung, Energien der Gamma-Quanten (prompt und verzögerte), Wirkungsquerschnitt für die Absorption thermischer Neutronen, partielle Wirkungsquerschnitte für die Emission prompter und verzögerter Gamma-Quanten, Westcott g-Faktoren, Zerfallsschemata und Halbwertszeiten von Aktivierungsprodukten. Sämtliche in der vorliegenden Arbeit verwendeten kernphysikalischen Daten sind, solange nicht anders gekennzeichnet, aus dieser IAEA-Datenbank /3-6/ entnommen.

3.2 Physikalische Grundlagen

Das im Rahmen der vorliegenden Arbeit zur stofflichen Charakterisierung von radioaktiven Abfällen entwickelte Analyseverfahren basiert auf der Kombination aus Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (engl.: Prompt-Gamma-Neutron-Activation-Analysis, PGNAA) und verzögerter Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (engl.: Delayed-Gamma-Neutron-Activation-Analysis, DGNAA). Sowohl PGNAA und DGNAA beruhen auf dem gammaspektrometrischen Nachweis einer neutroneninduzierten Kernreaktion. Während bei der DGNAA die Gammastrahlung über die Halbwertszeit des Aktivierungsprodukts verzögert emittiert wird, geschieht bei der PGNAA die Gamma-Emission des durch das Neutron angeregten Compoundkerns quasi-simultan zum Neutroneneinfang innerhalb eines Zeitfensters von 10^{-16}-10^{-12} Sekunden (siehe Abb. 3.1). Die Anregung des Compoundkerns geschieht durch den Neutroneneinfang des Kerns und die daraus resultierende Zunahme der Bindungsenergie durch die starke Wechselwirkung im Kern. Die Emission der verzögerten sowie der prompten Gammastrahlung ist eine energetische Abregung des Kerns.

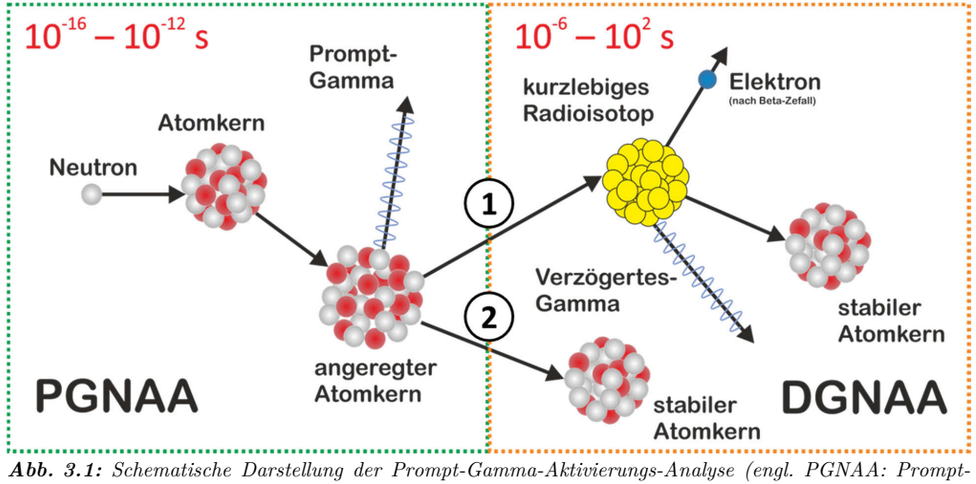


Abb. 3.1: *Schematische Darstellung der Prompt-Gamma-Aktivierungs-Analyse (engl. PGNAA: Prompt-Gamma-Neutron-Activation-Analysis) und der verzögerten Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (engl. DGNAA: Delayed-Gamma-Neutron-Activation-Analysis) /1-5/.*

Bei diesen Kernprozessen gelangen Atomkerne von einem weniger stabilen energiereicheren Zustand in einen stabileren energieärmeren Zustand, oft über mehrere Zwischenzustände. Die Abregung der angeregten Kernniveaus über diskrete energetische Zwischenzustände erklären auch die in Kaskaden emittierten prompten und verzögerten Gamma-Emissionen.

Nach der Abregung des Compoundkerns durch die Emission prompter Photonen ist es entweder möglich, dass dieser noch Anregungsenergie besitzt und radioaktiv ist, wie z. B. bei der Kernreaktion $^{27}Al(n,\gamma)^{28}Al$, wobei das gebildete Aktivierungsprodukt ^{28}Al mit einer Halbwertszeit von 2,246 Minuten unter der Emission von Photonen mit einer Energie von 1778 keV zerfällt (Reaktionspfad ① in Abb. 3.1), oder der Compoundkern hat sämtliche Energie emittiert und ist stabil (Reaktionspfad ② in Abb. 3.1). Ein Beispiel für den Reaktionspfad ② ist z. B. der Neutroneneinfang des Wasserstoffs (^{1}H). Beim Ablauf der Kernreaktion $^{1}H(n,\gamma)^{2}H$ emittiert der Compoundkern des Wasserstoffs ein promptes Gamma-Quant mit einer Energie von 2223,25 keV und zerfällt zu dem stabilen Wasserstoffisotop Deuterium.

Kohlenstoff hat zwei stabile Isotope ^{12}C mit einer Isotopenhäufigkeit von 99,93 % und ^{13}C mit einer Isotopenhäufigkeit von 1,07 %. Ein Neutroneneinfang des Kohlenstoffisotops ^{12}C, welches mit der deutlich größeren natürlichen Isotopenhäufigkeit vertreten ist, führt somit ebenfalls zu einem stabilen Atomkern, dem ^{13}C. Aus dieser Kernreaktion wird ein promptes Gamma-Quant mit einer Energie von 4945,30 keV emittiert. Nur ein Neutroneneinfang des mit einer geringen Isotopenhäufigkeit vorhandenen Isotops ^{13}C würde in einer Aktivierung und Bildung des radioaktiven Kohlenstoffisotops ^{14}C resultieren. Das Kohlenstoffisotop ^{14}C ist jedoch ein reiner Beta-Strahler und emittiert mit einer Halbwertszeit von 5730 Jahren alleinig β^--Teilchen mit einer maximalen Energie von 157 keV.

Je höher die Anzahl der Nukleonen eines Atomkerns ist, desto höher ist die Anzahl der emittierten Gamma-Quanten. Beispielsweise emittiert Kohlenstoff (Z = 6) nur vier prompte Photonen und Chlor (Z = 17) über 110 prompte Photonen. Prompte und verzögerte Gamma-Emissionen unterscheiden sich durch den Energiebereich ihrer Photonen. Das Energiespektrum der Prompt-Gammas ist mit bis ca. 11 MeV deutlich hochenergetischer als das der verzögerten Gammastrahlung. Die hochenergetischste verzögerte Gamma-Emission eines natürlichen Radionuklids ist mit 2614,53 keV die des ^{208}Tl, einem Zerfallsprodukt des ^{232}Th. Die hochenergetischste verzögerte Gamma-Emission eines durch Neutroneneinfang erzeugten künstlichen Radionuklids ist die des ^{49}Ca mit 4738,2 keV. Die Neutronen-Aktivierung des Stickstoffisotops ^{14}N führt hingegen zur Emission prompter Photonen mit einer Energie von 10829,12 keV.

Die hohe Energie der emittierten prompten Gamma-Quanten sowie die große Penetrationstiefe der Neutronen erlauben es auch, großvolumige Proben zu analysieren und deren Elementgehalt zu quantifizieren. Relevant ist hierbei die Berücksichtigung von Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmungseffekten in Abhängigkeit der Geometrie und der Elementzusammensetzung einer Probe. Neutronen-Selbstabschirmungseffekte sind beispielsweise bei einer Aktivierung mit schnellen Neutronen weniger ausgeprägt als bei einer Aktivierung mit thermischen Neutronen. Die Quantifizierung der Selbstabschirmungseffekte für Neutronen und Gamma-Strahlung wird in den nächsten Unterkapiteln erörtert. Nutzt man zur Bestrahlung einer Probe eine pulsierend arbeitende Neutronenquelle, so kann die prompte und verzögerte Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse nach einem zu definierenden Messzyklus vollzogen werden /3-7/. Die genaue Verfahrensweise und Anwendungsfälle der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse werden in Kapitel 4 dargestellt.

3.3 Neutronen-Selbstabschirmung

Freie Neutronen können beim Zusammenstoß mit Atomkernen verschiedene Kernreaktionen auslösen. Dabei unterscheidet man zwischen Streu- und Einfangprozessen. Während das mit dem Kern wechselwirkende Neutron bei den Streuprozessen seine Richtung und Energie ändern kann, wird es bei Einfangprozessen im Kern absorbiert. Neutronen haben in Abhängigkeit von ihrer Energie aufgrund von Streuung und Absorption innerhalb eines bestrahlten Objektes nur eine beschränkte Reichweite bzw. Penetrationstiefe. Dies kann bei Elementen mit einem großen Absorptionsquerschnitt für Neutronen dazu führen, dass nur die Rand- oder Teilbereiche einer zu untersuchenden Probe aktiviert werden. Der Umstand ist als Neutronen-Selbstabschirmung einer Probe definiert.

Würde man diesen Effekt bei einer Quantifizierung nicht berücksichtigen, würde es zu einer Unterschätzung der bestimmten Elementmasse für ein Objekt kommen. Um den Effekt der Neutronen-Selbstabschirmung eines Objektes zu quantifizieren, muss die Reichweite der Neutronen in einem Objekt bestehend aus einem Element oder einer Elementmischung, in Abhängigkeit der Wahrscheinlichkeit für die einzelnen Wechselwirkungen berechnet werden.

Das Maß für die Wahrscheinlichkeit, mit der einfallende Neutronen mit Atomkernen wechselwirken, ist der mikroskopische Wirkungsquerschnitt σ . Da der mikroskopische Wirkungsquerschnitt die Dimension einer Fläche hat (Einheit barn = 10^{-24} cm), kann man sich ihn anschaulich als theoretische Fläche eines Atomkerns vorstellen, bei deren Durchquerung einfallende Neutronen mit dem Atomkern interagieren. Der totale mikroskopische Wirkungsquerschnitt σ_t setzt sich aus dem Streuquerschnitt σ_s für elastische $\sigma_{s,e}$ und inelastische Streuung $\sigma_{s,i}$, dem Neutroneneinfangquerschnitt σ_c und dem Spaltquerschnitt σ_f zusammen:

$$\sigma_t = \sigma_{s,i} + \sigma_{s,e} + \sigma_c + \sigma_f \tag{3.1}$$

Die Hierarchie der Wirkungsquerschnitte wird in Abb. 3.2 aufgeführt. Beachtungsrelevant ist die Energieabhängigkeit sämtlicher Wirkungsquerschnitte. Die Angabe eines Wirkungsquerschnitts für eine neutroneninduzierte Kernreaktion ist nur mit Angabe der Neutronenenergie vollständig.

Der makroskopische Wirkungsquerschnitt Σ berücksichtigt neben der Wahrscheinlichkeit einer Kernreaktion pro Reaktionspartner noch die Packungsdichte der Atomkerne pro Volumen und wird durch die Beziehung:

$$\Sigma = N \cdot \sigma = \frac{\rho}{M} \cdot N_A \cdot \sigma \tag{3.2}$$

definiert. Hier ist N die Zahl der Atomkerne pro cm³, ρ die Dichte [g/cm³], M die molare Masse [g/mol] und N_A die Avogadro-Konstante [mol^{-1}]. Der makroskopische Wirkungsquerschnitt hat die Dimension cm^{-1}. Obwohl er als makroskopischer Wirkungsquerschnitt bezeichnet wird, hat diese Größe die Dimension und Bedeutung eines Absorptionskoeffizienten.

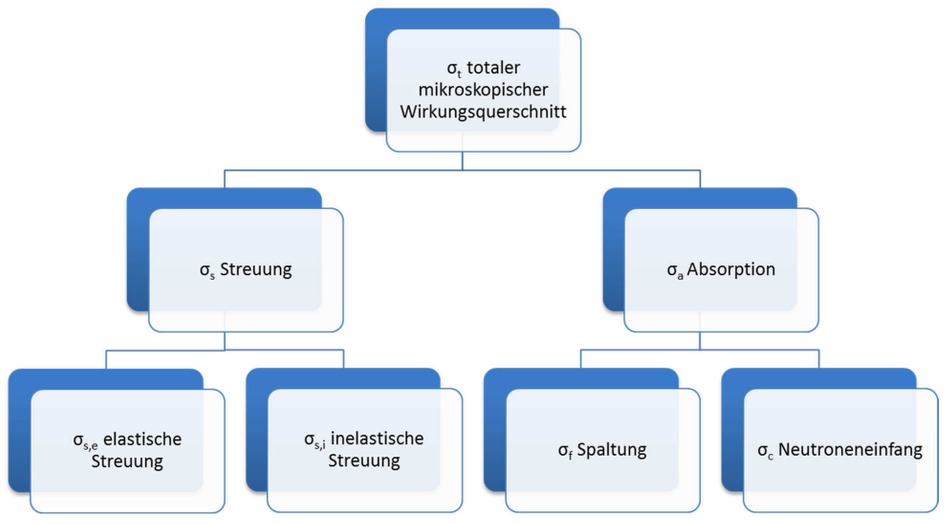


Abb. 3.2: *Hierarchie der mikroskopischen Wirkungsquerschnitte.*

Wird der makroskopische Wirkungsquerschnitt für die Absorption thermischer Neutronen $\Sigma_a = \left(\sigma_c + \sigma_f\right) \cdot N$ berechnet, so erhält man den Absorptionskoeffizienten, nach dem die Neutronenflussdichte Φ_0 eines Neutronenstrahls vertikal zu einer Probe sich über die Penetrationstiefe d reduziert:

$$\Phi_d = \Phi_0 \cdot e^{-\Sigma_a \cdot d} \tag{3.3}$$

Die mittlere freie Weglänge λ_m ist durch den reziproken Wert des makroskopischen Wirkungsquerschnitts Σ_a bestimmt. Die mittlere freie Weglänge ist der Weg in einer Probe, auf dem die Anfangsintensität eines gerichteten Neutronenflusses auf 1/e abnimmt. Entsprechend der Aufteilung des totalen Wirkungsquerschnittes in partielle Wirkungsquerschnitte kann man auch für die anderen Wechselwirkungsprozesse mittlere freie Weglängen definieren.

Besteht eine Probe aus einer Mischung von Elementen oder Isotopen, so ist die Summe der mikroskopischen Wirkungsquerschnitte $\sigma_{a,i}$ gewichtet mit den Atomkernen des jeweiligen Elements bzw. Isotops pro Kubikzentimeter N_i der makroskopische Wirkungsquerschnitt des gesamten Objektes:

$$\Sigma_{a,ges} = \sum N_i \cdot \sigma_{a,i} \tag{3.4}$$

Bei der Bestrahlung eines Objektes mit ungerichteten Neutronen (isotropes Neutronenfeld siehe Abb. 3.3) treffen die Neutronen von allen Seiten auf eine Probe und ihre Einfallrichtung ist somit nicht rechtwinklig zu der Oberfläche der Probe, weswegen die Gleichung 3.3 nicht angewendet werden kann. Die Gleichung wäre nur bei einem unidirektionalen parallelen Neutronenfluss anwendbar.

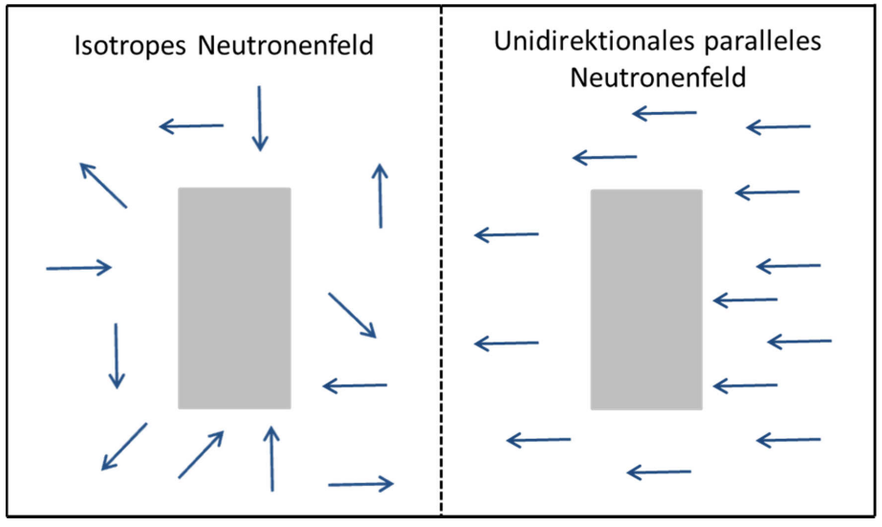


Abb. 3.3: *Schaubild zur Bestrahlung eines Objektes in einem isotropen Neutronenfeld und in einem unidirektionalen parallelen Neutronenfeld.*

Im Fall einer Probenbestrahlung innerhalb eines isotropen Neutronenfeldes definiert man den Neutronen-Selbstabschirmungsfaktor (engl. neutron self-shielding factor) f_n als Maß für die Schwächung des Neutronenflusses durch eine Probe:

$$f_n = \frac{\overline{\Phi_s}}{\Phi_0} \tag{3.5}$$

Hierbei ist $\overline{\Phi_s}$ die mittlere Neutronenflussdichte innerhalb der Probe und Φ_0 die ungestörte Neutronenflussdichte, wenn die Probe nicht vorhanden wäre. Der Neutronen-Selbstabschirmungsfaktor f_n hängt von dem makroskopischen Wirkungsquerschnitt für die Neutronenabsorption und -streuung sowie Probengröße und Probenform ab.

Man unterteilt die Neutronen-Selbstabschirmungsfaktoren in einen für thermische Neutronen $f_{n,th}$ und einen für epithermische Neutronen $f_{n,epi}$. Diese Größen berücksichtigen dann jeweils nur die Selbstabschirmung einer Probe für thermische oder epithermische Neutronen. Bei einer komplexen Probengeometrie ist die Berechnung der Neutronen-Selbstabschirmungsfaktoren nur mit Monte Carlo Berechnungsverfahren möglich. Für diesen speziellen Anwendungsfall wurde der MATSSF-Code geschrieben /3-8/.

Im Rahmen des MEDINA-Messverfahrens erfolgt die Quantifizierung einer Elementmasse anhand der Netto-Photopeakflächen einer Gammalinie, ermittelt aus den aufgenommenen Gamma-Spektren einer Probe bestrahlt in einem isotropen Neutronenfeld. Diese Netto-Photopeakflächen wären ohne die Neutronen-Selbstabschirmung der Probe größer, weswegen eine Vernachlässigung dieses Effekts zu einer Unterschätzung der zu quantifizierenden Elementmassen führt. Bei der Bestrahlung von 200-l-Fässern ist zwar die Geometrie der Probe durch die Spezifikation des 200-l-Fasses bekannt und wird bei der Analyse berücksichtigt, jedoch ist bei einer inhomogenen Elementverteilung ebenfalls die genaue Objektgeometrie einzelner Bestandteile innerhalb des 200-l-Fasses zu berücksichtigen. Diese sind jedoch in den meisten Fässern unbekannt, weswegen ggf. für die Quantifizierung innerhalb des Analyseverfahrens Annahmen für eine vereinfachte Objektgeometrie getroffen werden müssen. Für einfache geometrische Formen wurden gute numerische Approximationsformeln entwickelt /3-8/3-9/3-10/. Diese Annährungen zur Bestimmung der Neutronen-Selbstabschirmungsfaktoren werden nachfolgend für verschiedene Geometrieformen miteinander verglichen. Es wird die Bestimmung der Neutronen-Selbstabschirmungsfaktoren für die Objektgeometrien: Kugel, unendlich ausgedehnte Platte, endliche Platte, unendlicher Zylinder und endlicher Zylinder für den Fall der Bestrahlung in einem isotropen ungerichteten Neutronenfeld sowie die Objektgeometrien: Kugel, endliche Platte und endlicher Zylinder für die Bestrahlung mit einem unidirektionalen parallelen Neutronenfeld aufgeführt.

3.3.1 Aktivierung einer Kugel

Der Neutronen-Selbstabschirmungsfaktor für die Aktivierung einer Kugel in einem homogenen Neutronenfeld $f_{n,Kugel}$ wird mit der Größe:

$$x = 2 \cdot r \cdot \Sigma_{a,ges} \tag{3.6}$$

berechnet. Hierbei ist r der Radius der Kugel und $\Sigma_{a,ges}$ der makroskopische Wirkungsquerschnitt der gesamten Kugel. Für eine Kugel gelten die Gleichungen /3-8/:

$$f_{n,Kugel} = \frac{3}{x^3}\left(\frac{x^2}{2} - 1 + (1+x)\exp(-x)\right) \; für\; x > 0,009 \tag{3.7}$$

$$f_{n,Kugel} = 1 - \frac{3}{8}x \; für\; x \le 0,009 \tag{3.8}$$

Zur Aktivierung einer Kugel in einem unidirektionalen parallelen Neutronenfeld können aufgrund der Symmetrie der Kugel ebenfalls die gleichen Gl. 3.6 - 3.8 verwendet werden.

3.3.2 Aktivierung einer Platte

Der Neutronen-Selbstabschirmungsfaktor für eine unendlich oder endlich ausgedehnte Platte $f_{n,\infty Platte}$ wird mit der Größe:

$$x = d \cdot \Sigma_{a,ges} \tag{3.9}$$

errechnet. Hierbei ist d die Dicke der Platte und $\Sigma_{a,ges}$ der makroskopische Wirkungsquerschnitt der gesamten Platte. Für eine unendlich ausgedehnte Platte gilt die Gleichung /3-8/:

$$f_{n,\infty Platte} = \frac{1}{4x}\left(1 - e^{-2x} + 2xe^{-2x} + e^{-4x^2}\left(C + \ln(2x) + \sum_{n=1}^{p}\frac{(-2x)^n}{n \cdot n!}\right)\right) \tag{3.10}$$

wobei C die Eulerkonstante (C = 0,577251...) ist und für die Anzahl der aussagekräftigen Summationen p gilt: $p = 5$ wenn x < 0,05; $p = 10$ wenn 0,05 < x < 0,5 und $p = \left|\text{int}\, 10 \cdot x + 5\right|$ wenn x >1.

Für eine endlich ausgedehnte Platte gilt die Gleichung /3-8/:

$$f_{n,Platte} = \frac{1}{x}\left[x - \frac{x^2}{2}\left(\frac{3}{2} - C - \ln x\right) + \sum_{n=3}^{\infty}\frac{(-1)^n x^n}{(n-2)n!}\right] \tag{3.11}$$

Der Neutronen-Selbstabschirmungsfaktor für die Aktivierung einer unendlich ausgedehnte Platte $f_{n,Platte}$ in einem unidirektionalen parallelen Neutronenfeld wird mit der Gleichung bestimmt /3-8/:

$$f_{n,Platte} = \frac{1}{x}\left(1 - e^{-x}\right) \tag{3.12}$$

3.3.3 Aktivierung eines Zylinders

Der Neutronen-Selbstabschirmungsfaktor für einen unendlich ausgedehnten Zylinder $f_{n,\infty Zylinder}$ wird mit der Größe:

$$x = R\Sigma_{a,ges} \tag{3.13}$$

errechnet. Hierbei ist R der Radius des Zylinders und $\Sigma_{a,ges}$ der makroskopische Wirkungsquerschnitt des gesamten Zylinders. Für einen unendlich ausgedehnten Zylinder gilt die Gleichung /3-8/:

$$f_{n,\infty Zylinder} = \frac{2x}{3}\left[\begin{array}{l} 2x\left\{\left(K_1(x)I_1(x) + K_0(x)I_0(x)\right) - 1\right\} + \\ \dfrac{K_1(x)I_i(x)}{x} - K_0(x)I_1(x) + K_1(x)I_0(x) \end{array}\right] \tag{3.14}$$

Hierbei ist $K_n(x)$ die modifizierte Bessel-Funktion der ersten Art. $I_n(x)$ ist die modifizierte Bessel-Funktion der zweiten Art. Für die Gleichung (3.14) benötigen wir die Bessel-Funktionen der ersten und zweiten Art mit den Funktionsparametern $n = 0$ und $n = 1$.

Der Neutronen-Selbstabschirmungsfaktor für einen endlich ausgedehnten Zylinder $f_{n,Zylinder}$ in einem isotropen Neutronenfeld wird mit der Größe:

$$x = \frac{Rh}{R+h}\Sigma_{a,ges} \tag{3.15}$$

errechnet. Hierbei ist R der Radius des Zylinders, h die Höhe des Zylinders und $\Sigma_{a,ges}$ der makroskopische Wirkungsquerschnitt des gesamten Zylinders. Für einen endlich ausgedehnten Zylinder gilt die Gleichung /3-8/:

$$f_{n,Zylinder} = f_{n,Platte}(x) + \left[8x^{1,4}e^{-3,72x} + 0,4e^{-8x}\right] \cdot \left(f_{n,Kugel}(x) - f_{n,Platte}(x)\right) \tag{3.16}$$

Die Hilfsgröße $x = \frac{Rh}{R+h}\Sigma_{a,ges}$ muss dafür zunächst in die Gleichungen für $f_{n,Kugel}(x)$ und $f_{n,Platte}(x)$ eingesetzt werden.

Der Neutronen-Selbstabschirmungsfaktor für die Aktivierung eines endlich ausgedehnten Zylinders in einem unidirektionalen parallelen Neutronenfeld $f_{n,Zylinder}$ wird mit der Größe:

$$x = R\Sigma_{a,ges} \tag{3.17}$$

errechnet. Hierbei ist R der Radius des Zylinders und $\Sigma_{a,ges}$ der makroskopische Wirkungsquerschnitt des gesamten Zylinders. Für einen endlich ausgedehnten Zylinder gilt die Gleichung /3-8/:

$$f_{n,Zylinder} = \frac{2}{x}\left[I_1(x) - L_1(x)\right] \tag{3.18}$$

$I_n(x)$ ist die modifizierte Bessel-Funktion der zweiten Art und $L_n(x)$ die modifizierte Struve-Funktion der ersten Art. Für die Gleichung benötigt man die Bessel-Funktionen der zweiten Art und die Struve-Funktion der ersten Art mit dem Funktionsparameter $n=1$.

In Abhängigkeit von der zuvor eingeführten Berechnungsgröße x werden die verschiedenen Neutronen-Selbstabschirmungsfaktoren in Abb. 3.4 miteinander verglichen. Es ist ersichtlich, dass eine unendlich ausgedehnte Platte in einem isotropen Neutronenfeld den größten Selbstabschirmungseffekt für Neutronen aufweist. Aus diesem Grund wird beim MEDINA-Messverfahren für den Fall von inhomogen beladenen 200-l-Fässern die Neutronen-Selbstabschirmung als eine endlich ausgedehnte Platte als plausible Objektform unterstellt.

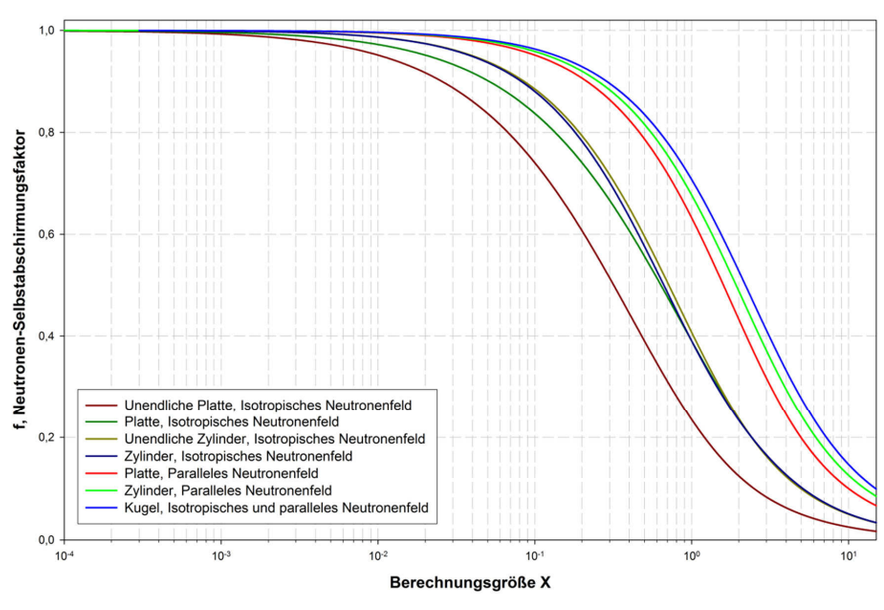


Abb. 3.4: *Neutronen-Selbstabschirmungsfaktoren für ausgesuchte geometrische Objekte.*

Sind die Neutronen-Selbstabschirmungsfaktoren für thermische Neutronen $f_{n,th}$ und für epithermische Neutronen $f_{n,epi}$ berechnet, kann die Photonenproduktionsrate, die aus diesem Objekt rührt, bestimmt werden. Die Photonenproduktionsrate R eines Objektes durch thermische und epithermische Neutronen-Aktivierung unter Berücksichtigung der Neutronenselbstabsorption ist gleich:

$$R = \sum_{i=1}^{n} N_i \cdot \bar{\phi}_{th} \left(\sigma_{\gamma,th} f_{n,th} + \sigma_{\gamma,epi} f_{n,epi} \frac{1}{v} \right) \tag{3.19}$$

Hierbei ist das Verhältnis zwischen mittlerem thermischen Neutronenfluss $\bar{\phi}_{th}$ und mittlerem epithermischen Neutronenfluss $\bar{\phi}_{epi}$ als v definiert.

$$v = \bar{\phi}_{th} \Big/ \bar{\phi}_{epi} \tag{3.20}$$

Die Anzahl der i-ten Elemente bzw. Isotope pro Kubikzentimeter wird durch die Größe N_i berücksichtigt. Die Wirkungsquerschnitte für eine partielle Photonenproduktion $\sigma_{\gamma,the}$ und $\sigma_{\gamma,epi}$ sind die des i-ten Elements bzw. Isotops.

3.4 Gamma-Selbstabschirmung

Durch die Absorption der Neutronen werden die Atomkerne einer Probe angeregt. Der angeregte Kernzustand zerfällt unter Aussendung sekundärer Strahlungsteilchen. Für die weiteren Betrachtungen innerhalb dieser Arbeit ist die emittierte Gamma-Strahlung von Relevanz. Wird Gammastrahlung aus dem Volumen einer Probe emittiert, so kommt es innerhalb der Probe selbst zu Wechselwirkungen der emittierten Photonen. Die Wechselwirkungen innerhalb einer Probe bezeichnet man als Gamma-Selbstabschirmung (engl. gamma ray self-attenuation). Wird eine Komponente im Inneren eines 200-l-Fasses durch Neutronen aktiviert, so können durch die Einbindung der strahlungsemittierenden Komponente in eine Matrix oder durch eine Verpackung (z. B. Fasswandung) weitere Gamma-Abschwächungen verursacht werden. Diese abschirmenden Effekte werden zusammenfassend als Matrixeffekte berücksichtigt.

Bei einer Wechselwirkung zwischen Photonen und Materie kann das Photon entweder vollständig absorbiert (Photoeffekt, Paarbildung) oder unter relativ großen Winkeln gestreut werden (Compton-Effekt). Die Intensität eines monoenergetischen parallelen Photonenstrahls mit der Anfangsintensität I_0 wird in einer Materieschicht mit der Dicke x geschwächt gemäß:

$$I_x = I_o \cdot e^{-\frac{\mu}{\rho} x \cdot \rho} \tag{3.21}$$

Der Absorptionskoeffizient, oder lineare Abschwächungskoeffizient μ [cm^{-1}], berücksichtigt den Photo- und Compton-Effekt sowie den Prozess der Paarbildung. Mit den Abkürzungen $\mu_{Photoeffekt} = \mu_f$,

$\mu_{Paarbildung} = \mu_p$ und $\mu_{Compton-Effekt} = \mu_c$ ergibt sich der Massenschwächungskoeffizient für Photonen aus der Summation der einzelnen Photonenwechselwirkungen zu:

$$\mu = \mu_f + \mu_p + \mu_c \tag{3.22}$$

Die Wahrscheinlichkeiten dieser einzelnen Wechselwirkungen sind von dem Reaktionspartner, definiert durch die Ordnungszahl Z, und der Anfangsenergie des Photons, abhängig. Der Wirkungsquerschnitt für den Photoeffekt (engl. photoelectric absorption), also die Lösung eines Elektrons aus der Atomhülle, hängt sehr stark von der Kernladungszahl des Absorbers ($\sigma_{Photo} \propto Z^5$) und der Energie des Photons ab. In unmittelbarer Nachbarschaft der Absorptionskante gilt:

$$\sigma_{Photo} \propto \frac{Z^5}{E_\gamma^{3,5}} \tag{3.23}$$

Der Streuquerschnitt ist proportional zur Zahl der potentiellen Streupartner im Atom (Z). Die Energieabhängigkeit des Compton-Streuquerschnittes (engl. cross section for incoherent scattering) kann durch:

$$\sigma_{Compton} \propto Z \frac{\ln E_\gamma}{E_\gamma} \tag{3.24}$$

beschrieben werden. Bei der Paarerzeugung (engl. pair production) handelt es sich um die Konversion eines Photons in ein Elektron-Positron-Paar im Coulomb-Feld eines Atomkerns. Da das Photon mindestens die Ruhemasse des Elektrons und des Positrons ausbringen muss, kommt dieser Prozess erst für Photonenenergien $E_\gamma > 2m_e c^2$ in Betracht. Der Wirkungsquerschnitt für diesen Prozess kann durch:

$$\sigma_{Paar} \propto Z^2 \ln E_\gamma \tag{3.25}$$

beschrieben werden.

Der Massenschwächungskoeffizient μ/ρ ist der dichtespezifische Abschwächungskoeffizient für Photonen und wird in der Einheit [cm²/g] angegeben. Wird Gamma-Strahlung von einem Objekt bestehend aus einer Mischung von Elementen abgeschwächt, so ist die Summe der dichtespezifischen Massenschwächungskoeffizienten des Elements i in [cm²/g] gewichteten mit der partiellen Dichte des jeweiligen Elements bzw. Isotops in [g/cm³] gleich dem Massenschwächungskoeffizienten des Gesamtobjektes.

$$\mu_{ges} = \sum_{i=1}^{n} \left[\left(\frac{\mu}{\rho} \right)_i \cdot \frac{W_i}{V} \right] \tag{3.26}$$

In Gleichung 3.26 ist W_i der Massenanteil des Elements i am Probevolumen V . Die Energieabhängigkeit des Massenschwächungskoeffizienten, sowie für die einzelnen Anteile für Photonenwechselwirkungen werden in Abb. 3.5 exemplarisch für eine bespielhafte Elementzusammensetzung von Beton aufgezeigt.

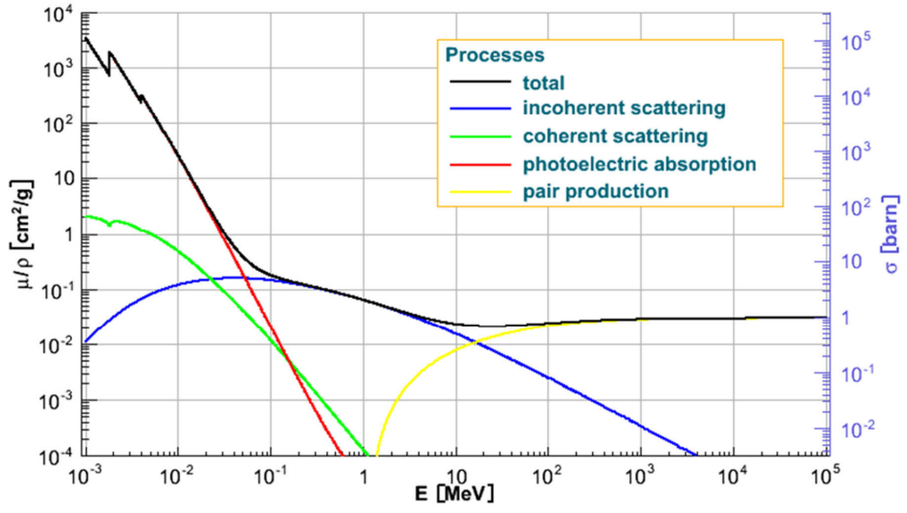


Abb. 3.5: *Energieabhängigkeit des Massenschwächungskoeffizienten μ/ρ sowie für Photonenwechselwirkungen σ für Photonen in Beton. (Elastische Streuung: coherent scattering, Inelastische Streuung: incoherent scattering, Photoeffekt: photoelectric absorption, Paarbildung: pair production).*

Der Gamma-Selbstabschirmungsfaktor (κ_{att}) einer Probe ist für stochastische Berechnungen gemäß dem Monte-Carlo-Verfahren wie folgt definiert:

$$\kappa_{att} = \frac{\iiint_V \rho I \varepsilon dV}{\iiint_V \rho I \varepsilon \exp(-\mu l) dV} \tag{3.27}$$

Hierbei ist ρ die Dichte der Probe, I die Emissionswahrscheinlichkeit für Photonen, ε die Effizienz des Detektors für den Nachweis der Photonen, μ der lineare Abschwächungskoeffizient und l die Weglänge der Photonen innerhalb der Probe. Für einfache geometrische Formen wurden anhand dieser Gleichung und einem vordefinierten Abstand zwischen Probe und Detektor numerische Approximationsformeln entwickelt /3-11/. Für einen Abstand zwischen Probe und Detektoreintrittsfenster von 100 cm wurden für eine Platte, einen Zylinder und eine Kugel die nachfolgenden analytischen Gleichungen für den Gamma-Selbstabschirmungsfaktor (κ_{att}) abgeleitet. Der für die Herleitungen zugrunde gelegte Abstand zwischen Probe und Detektoreintrittsfenster von 100 cm entspricht nahezu dem innerhalb des MEDINA-Messverfahrens möglichen Abstand eines aktivierten Objektes und dem Detektoreintrittsfenster, da der Abstand vom Mittelpunkt eines 200-l-Fasses bis zum Detektor 105 cm beträgt.

3.4.1 Gamma-Selbstabschirmungsfaktor einer Platte

Der Gamma-Selbstabschirmungsfaktor für eine Platte wird unter Verwendung der Größe:

$$x = \left(\mu\left(E_\gamma\right) \Big/ \rho \right) \cdot \rho \cdot d \tag{3.28}$$

gebildet. Hierbei ist $\mu\left(E_\gamma\right) \Big/ \rho$ der Massenschwächungskoeffizient, ρ die Dichte und d die Dicke der Platte. Der Gamma-Selbstabschirmungsfaktor für eine Platte wird mit der Gleichung berechnet /3-11/:

$$\kappa_{Platte}\left(E_\gamma\right) = \frac{1 - e^{-x}}{x} \tag{3.29}$$

3.4.2 Gamma-Selbstabschirmungsfaktor eines Zylinders

Der Gamma-Selbstabschirmungsfaktor für einen Zylinder wird unter Verwendung der Größe:

$$x = \left(\mu\left(E_\gamma\right) \Big/ \rho \right) \cdot \rho \cdot D \tag{3.30}$$

gebildet, wobei D der Durchmesser des Zylinders ist und wie folgt berechnet /3-11/:

$$\kappa_{Zylinder}\left(E_\gamma\right) = \frac{2\left[I_1(x) - L_1(x)\right]}{x} \tag{3.31}$$

Die Größen I_1 und L_1 sind die modifizierten Bessel- und die modifizierte Struve-Funktion der ersten Ordnung.

3.4.3 Gamma-Selbstabschirmungsfaktor einer Kugel

Der Gamma-Selbstabschirmungsfaktor für eine Kugel wird unter Verwendung der Größe:

$$x = \left(\mu\left(E_\gamma\right) \Big/ \rho \right) \cdot \rho \cdot D \tag{3.32}$$

gebildet, wobei D der Durchmesser der Kugel ist und wie folgt berechnet wird /3-11/:

$$\kappa_{Kugel}\left(E_\gamma\right) = \frac{3/2}{\mu D}\left\{1 - \frac{2}{x^2} + \exp(-x) \cdot \left[\frac{2}{x} + \frac{2}{x^2}\right]\right\} \tag{3.33}$$

In Abhängigkeit von der zuvor eingeführten Berechnungsgröße x werden die verschiedenen Gamma-Selbstabschirmungsfaktoren in Abb. 3.6 miteinander verglichen. Es ist ersichtlich, dass eine Platte den größten Selbstabschirmungseffekt für die Emission von Gamma-Strahlung aufweist. Aus diesem Grund

wird beim MEDINA-Messverfahren für den Fall von inhomogen beladenen 200-l-Fässern die Gamma-Selbstabschirmung für eine Platte als konservative Objektform unterstellt.

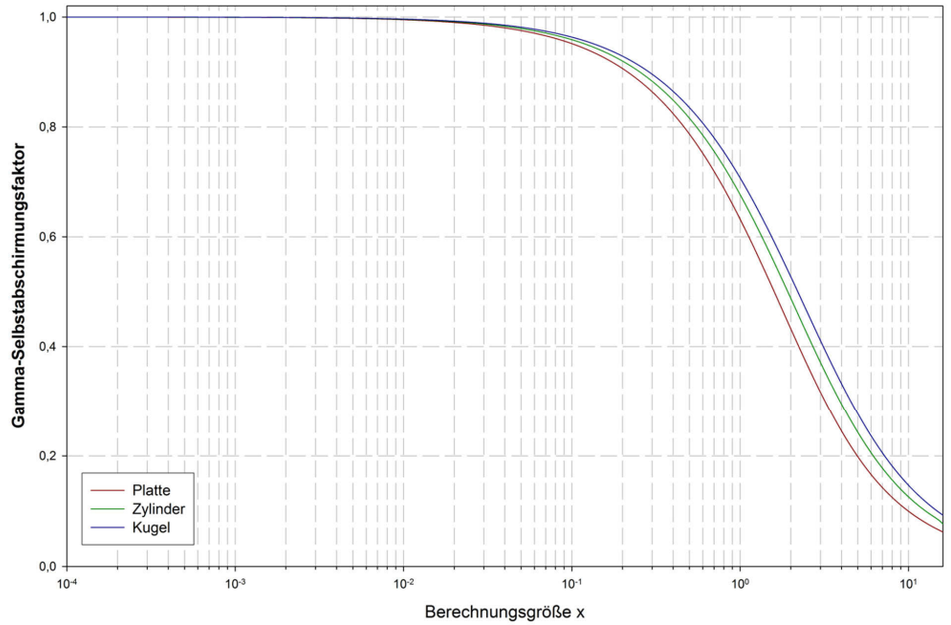


Abb. 3.6: Gamma-Selbstabschirmungsfaktoren (κ_{att}) für ausgesuchte geometrische Objekte.

Zusammenfassend wird die Effizienz des Detektors für den Nachweis von Photonen $\varepsilon\left(E_\gamma\right)$ aus einer Probe, umgeben von einer Matrix und einer Verpackung, durch folgende Gleichung bestimmt:

$$\varepsilon\left(E_\gamma\right) = \varepsilon_{att}^{Geometrie}\left(E_\gamma\right) \cdot \kappa_{att}^{Probe}\left(E_\gamma\right) \cdot g_{att}^{Matrix}\left(E_\gamma\right) \cdot g_{att}^{Wandung}\left(E_\gamma\right) \tag{3.34}$$

Der Einfluss der Messgeometrie, charakterisiert durch den Entstehungsort der Gamma-Emission bis hin zum Detektor, wird hierbei durch den Faktor $\varepsilon_{att}^{Geometrie}$ berücksichtigt. Die Gamma-Selbstabschirmung der Probe, hergeleitet anhand der Approximationsformeln der Gleichungen 3.28 bis 3.33, wird durch den Faktor κ_{att}^{Probe} bestimmt. Zuletzt wird die Reduzierung der Nachweiswahrscheinlichkeit der aus der Probe emittierten Gamma-Strahlung durch die Absorptionseffekte in der Matrix g_{att}^{Matrix} und den Wandungen $g_{att}^{Wandung}$ der Verpackung (z.B. die Stahlfasswandung) mit einbezogen. Die abschirmende Wirkung dieser vier Faktoren ist von der Energie E_γ der aus der Probe emittierten Photonen abhängig.

3.5 Industrielle Anwendung der Neutronen-Aktivierungs-Analyse

Die Neutronen-Aktivierungs-Analyse anhand von prompter und verzögerter Gamma-Quanten an kleinen Materialproben ist Stand von Wissenschaft und Technik und erfolgt heutzutage hauptsächlich mittels thermischen bzw. kalten Neutronenstrahlen, die durch Forschungsreaktoren erzeugt werden. An diesen Forschungsreaktoren (z. B. Budapest Research Reactor oder Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz FRM II) werden Materialproben im Grammbereich bestrahlt und die gemessenen prompten und verzögerten Gamma-Spektren ausgewertet. An der Technischen Universität in Delft (Niederlande) werden lange dünne Proben mit thermischen Neutronen des dortigen Forschungsreaktors aktiviert und die Prompt-Gamma-Spektren analysiert /3-12/.

Für die Entwicklung industriell attraktiver Routineanalyseverfahren, basierend auf der Prompten- und Verzögerten-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse, ergeben sich primär drei Herausforderungen:

Die erste ist die Abkopplung des Messverfahrens von Forschungsreaktoren hin zu mobilen Neutronenquellen. Die Nutzung der Forschungsreaktoren verspricht aufgrund der hohen thermischen Neutronenflüsse zwar gute Ergebnisse mit geringen Nachweisgrenzen, jedoch sind die durchzuführenden Analysen an zeitlich begrenzte Bestrahlungsfenster gebunden. Durch die eingeschränkte Verfügbarkeit sind diese Systeme nicht flexibel genug für Industriekunden.

Die zweite Herausforderung ist die Analyse von großvolumigen Proben. Der Vorteil der großen Penetrationstiefe von Neutronen erlaubt, unter Berücksichtigung der in den vorigen Unterkapiteln genannten Selbstabschirmungs- und Abschirmungseffekten für Neutronen und Gammastrahlung, eine integrale quantitative Elementanalyse großer Objekte. Der schwerwiegende Nachteil anderer Analyseverfahren, die eine Probenentnahme voraussetzen, kann bei integralen Messverfahren entfallen.

Die dritte Herausforderung ist die automatische Analyse der aufgenommenen Spektren. Hierbei muss eine Auswertungssoftware mehrere hundert Peaks in einem aufgenommen Gamma-Spektrum elementspezifisch zuordnen, Interferenzen zwischen Gamma-Peaks berücksichtigen, Netto-Photopeakfläche sowie deren Untergrund berechnen, Abschirmungseffekte berücksichtigen und Algorithmen verwenden, die den Informationsgewinn von winkel- bzw. orts- oder zeitabhängigen Spektren auszuwerten. Besonders die Zuordnung eines Peaks zu einem Element ist komplex, da in Abhängigkeit der Neutronenenergie das aus der Kernreaktion emittierte Gamma-Quant von verschiedenen Targetkernen resultieren kann (siehe Kapitel 4).

In den folgenden Anwendungsgebieten wird die Neutronen-Aktivierungs-Analyse für eine industrielle Umsetzung erforscht oder wird bereits eingesetzt:

- Exploration von Öl- und Gaslagerstätten und anderen Rohstoffvorkommen
- Qualitätskontrolle von Massenströmen (z. B. im Berg- oder Tagebau)
- Analyse von sekundären Rohstoffen (Recyclingmaterialien, Abfälle)

- Kampfmittelräumung von Flächen
- Analyse von Frachtcontainern zwecks Einfuhr- und Ausfuhrkontrollen
- Korrosionsfortschritt von stahlarmierten Betonstrukturen
- Stoffliche Charakterisierung radioaktiver Abfälle

Besondere Bedeutung kann die Neutronen-Aktivierungs-Analyse zukünftig in der Gewinnung von primären Rohstoffen und der Optimierung von Recyclingprozessen zwecks einer höheren Wertschöpfung erlangen (siehe Abb. 3.7).

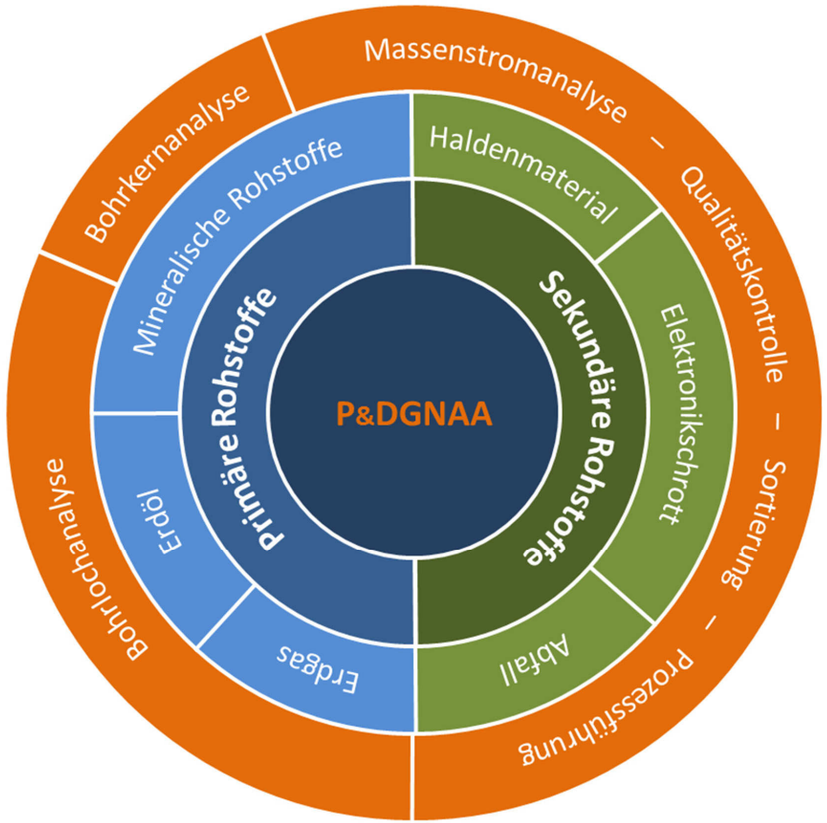


Abb. 3.7: *Anwendungsgebiete der Neutronen-Aktivierungs-Analyse (P&DGNAA) mit besonders hohem Wertschöpfungspotential.*

Die Heterogenität der Anwendungsfelder der Neutronen-Aktivierungs-Analyse gibt einen guten Einblick in die hohe wirtschaftliche Verwertbarkeit der Technik. Im Folgenden werden einige konkrete Anwendungsgebiete vorgestellt.

3.5.1 Bohrlochmessungen zur Exploration von Öl- und Gaslagerstätten

Im Bereich der Erdölexploration und des Ölfeldservices ist Schlumberger Ltd. Marktführer. Es beschäftigt etwa 113.000 Angestellte in über 140 Ländern. Der Umsatz betrug im Jahr 2011 39,5 Milliarden US-Dollar. Im Jahre 2011 investierte Schlumberger Ltd. 1,1 Milliarden US-Dollar in die Entwicklung von neuen Technologien. Mit 25 Forschungs- und Entwicklungsstandorten weltweit legt das Unternehmen großen Wert auf die Entwicklung innovativer Technologien, um seine Markposition zu sichern bzw. auszubauen. Eins der zentralen Forschungs- und Entwicklungsprojekte der letzten Jahre wurde im Juni 2012 vorgestellt. Es handelt sich um die Entwicklung des Litho Scanners /3-13/, eines komplexen Analysesystems basierend auf der Neutronen-Aktivierungs-Analyse. Der Litho Scanner wird an einem Drahtseil in ein Bohrloch herabgelassen, mit dem Ziel, dort in-Situ eine quantitative Gesteinsanalyse und die Bestimmung des gesamten organischen Kohlenstoffanteils (engl. total organic carbon: TOC) durchzuführen. Hiermit ist die Exploration von Öl- und Gaslagerstätten und sogar komplexer Reservoirs von Schiefergas möglich. Der Litho Scanner besteht aus einem gepulsten Neutronengenerator und einem Szintillationsdetektor aus Lanthan-Bromid ($LaBr_3$:Ce) mit angepasstem Photomultiplier und Nuklearelektronik (siehe Abb. 3.8). Aufgrund der hohen Zeitauflösung des Detektionssystems ist mit dem Litho Scanner sowohl eine Spektrenakquisition während des 8 µs-Neutronenpulses zur Erfassung von Gamma-Emissionen, verursacht durch inelastischen Streuungen an Atomkernen, sowie die von prompten Gamma-Emissionen durch thermischen Neutroneneinfang möglich. Diese fortgeschrittene Variante der Neutronen-Aktivierungs-Analyse wird als Pulsed Fast and Thermal Neutron Activation (PTFNA) bezeichnet. Nachteil des Litho Scanners ist die eingeschränkte Energieauflösung des Szintillationsdetektors.



Abb. 3.8 links: *Litho Scanner der Firma Schlumberger Ldt. für Bohrlochmessungen zur Öl- und Gasexploration,* ***rechts:*** *Spektralanalyse von Reaktionen mit schnellen (Inelastic) und thermischen Neutronen (Capture) /3-14/.*

3.5.2 Online-Qualitätskontrolle von Rohstoffmassenströmen beim Bergbau

Die Rohstoffindustrie wird in naher Zukunft entscheidenden Veränderungen gegenüberstehen. Durch die zu erwartende Steigerung des Bedarfs an Rohstoffen und die abnehmenden Qualität neuer identifizierter Lagerstätten hinsichtlich Wertstoffgehalt, Komplexität, Teufe, Zugang etc. sind neue Methoden und Technologien zur besseren Nutzung der Ressourcen ein wichtiger und notwendiger Beitrag zur Sicherung der Rohstoffverfügbarkeit. In vielen Fällen, insbesondere im Erzbergbau, wird das gesamte gewonnene Haufwerk bis hin zum Aufschlussgrad zerkleinert. Dazu muss das gewonnene Rohmaterial zunächst, teilweise aus mehreren tausend Metern Tiefe hin zur Aufbereitungsanlage transportiert werden. Anschließend durchläuft die gesamte Masse unterschiedliche Aufbereitungsprozesse. Daraus resultieren sowohl ein hoher Energieverbrauch für die Aufbereitung der Erze als auch gesteigerte Verschleißkosten. Neben traditionellen Methoden zur Bergevorabscheidung haben sich auch Onlineanalyseverfahren basierend auf der NAA durchgesetzt, die auf Förderbändern transportierte Massenströme integral analysieren. Die Qualitätsbeurteilung von Massenströmen transportiert auf Förderbändern gemäß traditioneller Methoden ist in der Regel mit einer aufwändigen charakteristischen Probeentnahme, -aufbereitung, -analytik sowie dem hierfür erforderlichen hohen Personalaufwand verbunden.

Der Firma Gamma-Metrics, mittlerweile Thermo Fisher Scientific Inc., gelang durch die Entwicklung und Kommerzialisierung des ersten Online-Kohleanalyseverfahrens (engl. Online Coal Analyzer) im Jahr 1984 die entscheidende Innovation in der Echtzeitanalyse zur Qualitätskontrolle von Massen- und Schüttgütern. Basierend auf der PGNAA konnten erstmals online während des Transports große Kohlemassen bzgl. ihrer chemischen Zusammensetzung qualitativ bewertet werden. Hierbei geschieht die Analyse der Kohle auf einem Förderband integral über eine bestimmte Messzeit, wie z.B. einer Minute. Durch den Abbauort bedingte qualitative Unterschiede konnten durch das Verfahren bei der Mischung auf Zwischenlagerhalden oder Silos gemittelt oder absichtlich separiert werden. Die hierbei untersuchten Kontrollvariablen, die das Onlineanalyseverfahren minutengenau ermittelte, waren der Aschegehalt und der Schwefelgehalt /3-15/. Der Massendurchsatz durch das Analyseverfahren betrug 5 t/h. Aufgrund der durch die Echtzeitanalyseverfahren beständigen Einhaltung der von Kunden geforderten Produktspezifikationen und der größeren operationalen Flexibilität bei der Zwischenlagerung der Kohle hatten sich die Analyseverfahren innerhalb kürzester Zeit amortisiert. Heutzutage werden Online Coal Analyzer weltweit an über 250 Standorten eingesetzt /3-16/ und wurden zwischenzeitlich dahingehend verbessert, dass auch weitere mineralogische Bestandteile und die Feuchtigkeit detektiert werden können (siehe Abb. 3.9). Zusätzlich ist durch das Verfahren die Brennwertbestimmung der Kohle möglich.



Abb. 3.9: Echtzeitanalyseverfahren der Firma Thermo Fisher Scientific Inc. zur Elementaranalyse von Erzen auf Förderbändern mit der Modellbezeichnung: Thermo Scientific CB Omni, Cross-Belt Elemental Analyzer for the Mining Industry Omni /3-16/.

Die Erfahrungen, die Thermo Fisher Scientific Inc. durch die Entwicklung von Echtzeitanalyseverfahren an Förderbandsystemen gewonnen hat, wurden ausgehend vom Kohlebergbau für den Erzbergbau und die Zementindustrie adaptiert. Hier werden die Systeme ebenfalls zur Prozesssteuerung und Qualitätskontrolle genutzt. Durch den Einsatz dieser Systeme in der Zementproduktion, z. B. beim Mischbettaufbau oder bei der Rohgemischkontrolle vor der Rohmühle, kann die Gleichmäßigkeit des Rohmehls zur Ofenaufgabe maßgeblich gesteigert werden. Im Jahr 2006 erwarb Thermo Fisher Scientific Inc. den größten Konkurrenten für Echtzeitanalyseverfahren (Analyser Systems Inc.) und bündelte somit das Know-how der beiden Firmen. Im Jahr 2007 führte Thermo Fisher Scientific Inc. ein neues Produkt mit der Typbezeichnung CB Omni zur Analyse von Massengütern auf Förderbändern ein /3-17/. Als Neutronenquelle nutzen alle kommerziell verfügbaren Analyseverfahren der Firma Thermo Fisher Scientific Inc. eine Spontanspaltungsquelle (z.B. 80 Mikrogramm ^{252}Cf). Als Detektor wird meist ein NaI (Tl)-Szintillationsdetektor verwendet.

3.5.3 Korrosionsfortschritt von stahlarmierten Betonstrukturen

Beton ist ein Baustoff, der erhebliche Druckkräfte aufnehmen kann (40 N/mm² und mehr). Er versagt jedoch schon bei niedrigen Zugbeanspruchungen (4 N/mm² und weniger). Aus diesem Grund wird Beton als tragender Baustoff nur im Verbund mit zugfestem Bewehrungsstahl eingesetzt. Solch eingesetzter Stahlbeton ist im Prinzip ein zeitfester Baustoff, da die Bewehrung und der Beton sehr ähnliche thermische Ausdehnungskoeffizienten besitzen und der alkalische Beton den Stahl vor Korrosion schützt. Trotzdem können in der Praxis als Folge einer Korrosion des Armierungsstahls in armierten Betonkonstruktionen sehr ernste Probleme entstehen (siehe Abb. 3.10). Eine fortgeschrittene Korrosion der Stahlarmierung reduziert die aufnehmbaren Spannungen des Verbundwerkstoffs, wodurch in Folge z. B. der Einsturz von Gebäudeteilen möglich ist. Der Hauptgrund für eine Korrosion der Armierung ist, dass der die Armierung umgebende Beton seine Korrosionsschutzfähigkeit als Folge der Bildung von

Karbonaten verliert. Auch hohe Chloridgehalte bewirken den Verlust der Korrosionsschutzfähigkeit des Stahlbeton und können aus der Anwesenheit von Verunreinigungen in den Betonbestandteilen resultieren oder bei Parkhäusern und Tiefgaragen daraus, dass ein Chloridangriff vorwiegend aus der Verwendung von Tausalzen in den Bauwerken im Winterdienst oder dem Einschleppen von Chloriden durch PKWs von öffentlichen Straßen geschieht /3-18/. Die Kenntnis des Vorhandenseins und der Verteilung der Chloridgehalte in Betonstrukturen ist somit für eine Qualitätsbewertung sowie die nachgeschaltete Behandlung von Betonstrukturen von großem Nutzen. Über In-situ-Messungen mit portablen Systemen, basierend auf einer Californiumquelle, von der Neutronen aus der Spontanspaltung emittiert werden oder einer Deuterium-Deuterium-Fusionsneutronenquelle und einen geeignetem Detektor ist es möglich, die räumliche Verteilung charakteristischer Elemente in Betonstrukturen zu ermitteln /3-19/3-20/3-21/. Hierdurch können die Qualität der Betonstruktur bewertet werden und Gefahrenpotentiale abgeleitet werden /3-20/.

Obwohl mehrere Elemente für eine Qualitätsbewertung der Betonstrukturen in Betracht kommen, ist die Detektion von Chloriden wohl die wichtigste, da sich Chloride aufgrund des hohen Wirkungsquerschnitts für einen thermischen Neutroneneinfang gut durch die PGNAA erkennen lassen. Bis dato sind keine kommerziellen PGNAA-Systeme für die Qualitätsbewertung von Betonstrukturen verfügbar. Die Systeme waren Inhalt einzelner Forschungsansätze. Eine Kommerzialisierung ist, vermutlich aufgrund der zu geringen Nachfrage, nicht zu erwarten.



Abb. 3.10: *Korrosion an einer Stahlbetonarmierung.*

3.5.4 Westinghouse-Prototyp zur Abfallcharakterisierung

Die US Environmental Protection Agency (EPA) ist eine unabhängige Behörde der Regierung der Vereinigten Staaten von Amerika zum Schutz der menschlichen Gesundheit und der Umwelt. Gemäß den gesetzlichen Regelungen, definiert durch die Resource Conservation and Recovery Acts (RCRA), hat die EPA die Aufgabe und die Befugnis, gefährliche Abfälle zu überwachen. Diese Kontrolle umfasst Erzeugung, Transport, Behandlung, Lagerung und Entsorgung von gefährlichen Abfällen.

Aufgrund der Vorteile einer integralen zerstörungsfreien Analyse von verpackten Abfällen, die gemäß RCRA überwachsbedürftig sind, entwickelte die Firma Westinghouse Electric Company einen PGNAA-Prototyp zur Analyse von 55-Gallonen-Fässern (208,2 Liter). Beim Design der Anlage wurde Westinghouse durch die Firma BNFL Instruments unterstützt. Die Herstellung des Prototyps wurde im März 2001 abgeschlossen (siehe Abb. 3.11). Der Prototyp bestand aus einer Bestrahlungskammer mit einer inneren, zwei Zoll dicken Polyethylenwandung, einer mittleren Wandung aus Graphit mit einer Stärke von vier Zoll und einer äußeren Schutzwandung aus Stahlblech. Innerhalb der Bestrahlungskammer waren Baugruppen für einen Hubtisch und die Rotation des Fasses installiert. Der verwendete D-T-Neutronengenerator emittiert max. 10^8 Neutronen pro Sekunde. Der genutzte koaxiale N-Typ HPGe-Detektor hatte eine relative Effizienz von 40 % /3-22/3-26/. Der Schwerpunkt der experimentellen Untersuchungen mit dem PGNAA-Prototyp lag auf dem Nachweis der homogen in 55-Gallonen-Fässern verteilten Elemente Quecksilber, Cadmium und Blei und dem Einfluss von verschiedenen Matrixeffekten wie der Dichte oder dem Bor- und Schwefelgehalt einer Abfallmatrix /3-23/3-24/. Die Messapparatur wurde an konventionellen Abfallschlämmen und an Bauschutt getestet. Hierbei stellte sich heraus, dass durch die Inhomogenität des Bauschutts Probleme bei der Quantifizierung entstanden, die nicht gemäß den Anforderungen behoben werden konnten. Radioaktive Abfälle waren kein Untersuchungsgegenstand. Die Untersuchung gemäß der beschriebenen Technik sowie der zugehörigen Quantifizierungsmethode ließ sich die Westinghouse Electric Corp. patentieren /3-25/.

Der PGNAA-Prototyp weist deutliche Schwächen bzgl. des Anlagendesigns auf. Primär sind hier die Verwendung von Polyethylen als Moderatorwerkstoff und die großen Metallmassen innerhalb und außerhalb der Bestrahlungskammer zu nennen. Auch die nicht vorhandene Abschirmung des Detektors gegenüber einer Schädigung durch Neutronen und die geringe Effizienz des Detektors für den Nachweis hochenergetischer Prompt-Gamma-Strahlung gehören zu den Defiziten des Prototyps. Es ist nicht bekannt, ob die Entwicklung des Prototyps fortschreitet. Bis dato wird das Verfahren nicht bei realen Abfällen angewandt. Eine Kommerzialisierung ist aufgrund des Stillstands in den letzten zehn Jahren und der Möglichkeit zum Erwerb des Patentes nicht zu erwarten.



Abb. 3.11: *PGNAA Prototypsystem der Firma Westinghouse zur Prüfung von 208-Liter-Fässern aus dem Jahr 2000. Die Tür der Bestrahlungskammer ist offen, um die Position des Fasses in der Kammer zu zeigen. Das Fass kann während der Messung rotiert und angehoben werden /3-26/.*

3.5.5 REGAIN-Messzelle

Die CEA (fr. Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, dt. Kommissariat für Kernenergie und alternative Energien) sowie die ANDRA (fr. Agence Nationale pour la Gestion des Déchets Radioactifs, dt. Nationale Agentur für das Management radioaktiver Abfälle) sind an nationalen einem Forschungs- und Entwicklungsprogramm beteiligt, bei dem die stoffliche Charakterisierung von mittelaktiven Abfällen mit langlebigem Radionukliden (MA LL: medium activity & long lived) verbessert werden soll. Auch hier steht die Entwicklung eines messtechnischen Verfahrens und dessen Validierung im Vordergrund. Durch das Messverfahren sollen Abfallprodukte zerstörungsfrei analysiert werden. Anhand dieser Technik soll verifiziert werden, ob Abfallgebinde die Endlagerungsbestimmungen zur Vermeidung von chemotoxischen Verschmutzungen im Grundwasser einhalten. Zwecks Umsetzung dieses staatlich geförderten Forschungsprogramms wurde in Cadarache (Frankreich) von 2008 bis 2011 eine PGNAA-Messzelle als Testeinrichtung mit dem Namen REGAIN (Recherche des Gamma d´Activation et d´Irradiation Neutronique) aufgebaut und verschiedene Elementsignaturen aufgenommen /3-27/.



Abb. 3.12: *Messzelle REGAIN (Recherche des Gamma d´Activation et d´Irradiation Neutronique), aufgebaut bei der CEA in Cadarache, Frankreich (Bildquelle: CEA).*

Als Detektor kam ein HPGe-Detektor der Firma CANBERRA mit einer relativen Effizienz von 30 % zum Einsatz. Der in der Anlage verwendete Neutronengenerator der Firma EADS SODERN ist vom Typ GENIE 16. Als Moderatorwerkstoff der REGAIN-Messzelle wurde Graphit verwendet. Tragende Strukturelemente waren aus Aluminium hergestellt (siehe Abb. 3.12), was sich als nachteilig herausstellte. Der große Wirkungsquerschnitt des Aluminiums für einen thermischen Neutroneneinfang und die durch die Bestrahlung aufgebaute verzögerte Aktivität des ^{28}Al ($T_{1/2}$ = 2,246 m, E_γ = 1778,92 keV) führte zu einem erhöhten Untergrund, der mit zunehmender Messzeit ansteigt. Es wurde die Leistungsfähigkeit des Systems für die Elemente mit großem Neutroneneinfangwirkungsquerschnitt wie Quecksilber, Cadmium, Bor und Chrom untersucht. Ein im Jahre 2009 geschlossener Kooperationsvertrag zwischen der CEA und dem Forschungszentrum Jülich ermöglicht eine wissenschaftliche Zusammenarbeit auf dem Gebiet der Charakterisierung radioaktiver Abfälle mittels prompter und verzögerter Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse /3-27/.

3.5.6 PGNAA-Testeinrichtung zur zerstörungsfreien Charakterisierung von 50-l-Fässern

Das Institut für Nukleare Entsorgung und Reaktorsicherheit der Forschungszentrum Jülich GmbH begann die Entwicklung und Erprobung eines zerstörungsfreien Multi-Element-Analyseverfahrens im Jahr 2007. Von Beginn an war die Zielsetzung, mit dem Analyseverfahren potenziell wassergefährdende Stoffe in radioaktiven Abfällen durch die Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse zerstörungsfrei detektieren zu können. Eine erste Testeinrichtung zur Charakterisierung großvolumiger Proben wurde aufgebaut. Als Detektor kam ein HPGe-Detektor der Firma CANBERRA mit einer relativen Effizienz von 105 % zum Einsatz. Der in der Anlage verwendete Neutronengenerator der Firma EADS SODERN war vom Typ GENIE 16. Um die Nachweisempfindlichkeit des Systems zu prüfen, wurden hauptsächlich homogene Probenfässer bis zu einem maximalen Volumen von 50 Liter untersucht. Anschließend wurde

der Gehalt der homogen in einer Zementmatrix verteilten wassergefährdenden Elemente qualitativ und quantitativ bestimmt.

Die mit der ersten Testeinrichtung gewonnenen Ergebnisse wurden in der Dissertation von Herrn Dr. John Paul Herman Kettler mit dem Titel „Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfälle“ /1-5/ veröffentlicht.

Der Aufbau der MEDINA-Testeinrichtung stützt sich auf die Erkenntnisse der Vorgängeranlage (siehe Abb. 3.13) zur zerstörungsfreien Charakterisierung von 50-l-Fässern. Die konkrete Konzeption der MEDINA-Testeinrichtung wird im Kapitel 5 beschrieben.

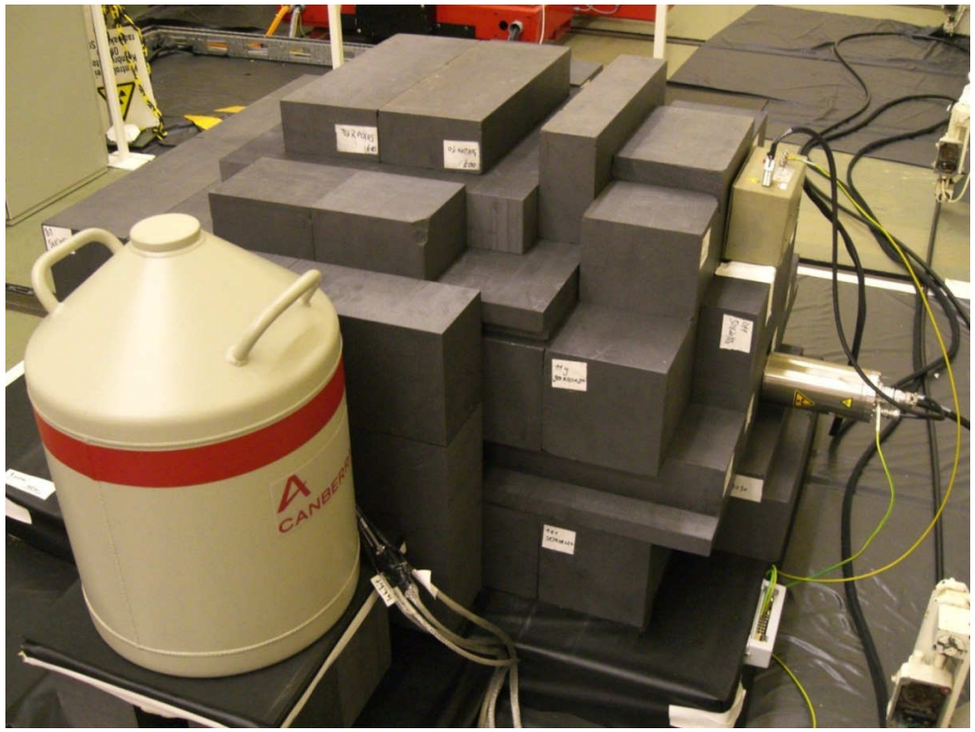


Abb. 3.13: *PGNAA-Testeinrichtung, aufgebaut im Forschungszentrum Jülich und betrieben im Zeitraum 2007-2009 /1-5/.*

Kapitel 4

Zyklische Neutronen-Aktivierungs-Analyse mit einer hochenergetischen Quelle

Formel-Kapitel (nächstes) Abschnitt 1

Formel-Kapitel (nächstes) Abschnitt 4

Zusammenfassung

Bei der Neutronen-Aktivierungs-Analyse wird die durch Neutronenbestrahlung induzierte Strahlung gammaspektrometrisch gemessen und anhand der detektierten Signale die Elementaranalyse einer Probe durchgeführt. Nutzt man wie im MEDINA-Messverfahren eine gepulste Neutronenquelle und führt den Prozess von Neutronenemission und anschließender gammaspektrometrischer Messung zyklisch aus, ergeben sich in Abhängigkeit der Bestrahlungsparameter und der Datenakquisition unterschiedliche Fälle für eine Elementquantifizierung.

Die aus der Quelle emittierten schnellen Neutronen müssen deshalb für eine Neutronen-Aktivierungs-Analyse mittels thermischer Neutronen zunächst moderiert werden. Da die Wirkungsquerschnitte für den Einfang thermischer Neutronen für die meisten Elemente größer sind als für schnelle Neutronen, ist die Neutronen-Aktivierungs-Analyse mittels thermischer Neutronen sensitiver als mittels schneller Neutronen. In diesem Kapitel werden die unterschiedlichen Fälle zur Analyse einer Probe anhand der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse erörtert. Es stellt die Vorteile einzelner Fälle zur Detektion bestimmter Isotope vor.

4.1 Moderation von schnellen Neutronen

Durch die Verwendung einer gepulsten Neutronenquelle ergibt sich die Möglichkeit der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse. Bei MEDINA dient als Neutronenquelle ein Neutronengenerator, der im Pulsbetrieb genutzt wird. Der Neutronengenerator ist ein kompakter Linearbeschleuniger, in dem durch eine Fusionsreaktion zwischen Deuterium und Tritium (D & T) 14-MeV-Neutronen mit geringer Energieanisotropie emittiert werden. Die Neutronenquelle kann als Punktquelle angesehen werden, wobei die Emission der freien Neutronen isotrop erfolgt. Die pulsierende Emission der Neutronen aus einer Punktquelle und die Wechselwirkungen der Neutronen resultieren in einem orts- und zeitabhängigen Neutronenenergiespektrum innerhalb der Bestrahlungskammer. Die anfänglich hochenergetischen 14-MeV-Neutronen werden auf ein thermisches Niveau abgebremst, sie werden thermalisiert. Die Energieabnahme geschieht durch Stöße mit Atomkernen, welche in Moleküle eingebunden sind und thermische Energien aufweisen. Dies bedeutet, die Energieabgabe der Neutronen ist so lange möglich, bis sich diese im thermischen Gleichgewicht mit dem umgebenden Medium befinden. Thermische Neutronen haben bei 293,6 K gemäß der Maxwell-Boltzmann-Verteilung eine wahrscheinlichste Neutronengeschwindigkeit von 2200 m/s, was einer kinetischen Energie von 25,3 meV entspricht. Die Energieabnahme der Neutronen von 14 MeV bis auf ein thermisches Niveau von ca. 25 meV erstreckt sich über sechs Größenordnungen. Bei Neutronenenergien oberhalb von 0,1 MeV geschieht die Neutronenbremsung durch inelastische als auch elastische Streuung. Unterhalb dieser Grenze wird der Abbau der kinetischen Energie nur noch durch elastische Stöße bewirkt. Das Medium, auf das die Neutronen über zahlreiche Stoßprozesse ihre Energie hauptsächlich übertragen, wird als Moderator bezeichnet und der Vorgang als Moderation.

Die maximale Energie, die bei einem Stoß eines Neutrons mit einem Atomkern übertragen werden kann, ist von der Masse des Atomkerns und dem Streuwinkel abhängig. Der größtmögliche Energieverlust bei einem elastischen Stoßprozess ist beim zentralen Stoß der Rückwärtsstreuung für das Neutron gegeben. Für den Fall der Neutronenstreuung am Wasserstoff kann das Neutron bei einem einzigen Stoß mit einem freien Proton seine ganze kinetische Energie verlieren. Bei schweren Kernen sind aufgrund der Massenverhältnisse nur noch geringe Energieübertragungen auf den Stoßpartner möglich. Mit Hilfe des Kosinussatzes lässt sich in Abhängigkeit von der Massezahl A des Stoßpartners die Energie E_1 und E_2 vor und nach dem Stoß ableiten:

$$\frac{E_2}{E_1} = \frac{1 + A^2 + 2A\cos\beta}{(A+1)^2} \tag{4.1}$$

Durch Einführung der Größe $\alpha = (A-1/A+1)^2$ kann Gleichung 4.1 auch folgendermaßen geschrieben werden /4-3/:

$$\frac{E_2}{E_1} = \frac{1+\alpha}{2} + \frac{1-\alpha}{2}\cos\beta \tag{4.2}$$

Für $\beta = 180°$ (Rückwärtsstreuung), also $\cos\beta = -1$ folgt, $E_2 = \alpha E_1$; für $\beta = 0°$ (Vorwärtsstreuung), $\cos\beta = 1$, folgt $E_2 = E_1$. Der maximale Energieverlust tritt bei Rückwärtsstreuung auf, wobei $1-\alpha$ ein Maß für die maximale Energie ist, die ein Neutron durch die Wechselwirkung mit einem Kern der Massenzahl A verlieren kann. Die für die Moderation schneller Neutronen aussagekräftigere Größe ist jedoch nicht der maximale bzw. minimale, sondern der mittlere Energieverlust pro Stoß. Ein Maß für den mittleren Energieverlust pro Stoß ist das mittlere logarithmische Energiedekrement ζ /4-3/:

$$\zeta = \overline{ln\frac{E_0}{E_2}} \tag{4.3}$$

E_0 ist die Anfangsenergie der Neutronen. Der Querstrich bedeutet, dass über alle möglichen streuwinkelabhängigen Endenergien E_2 gemittelt wird. Bei der Berechnung von ζ wird die Tatsache genutzt, dass die Streuung im Schwerpunktsystem isotrop ist. Die Proportionalität zwischen E_2/E_1 und $\cos\beta$ führt dazu, dass alle Werte E_2, die zwischen E_1 und $\alpha \cdot E_1$ liegen, gleich wahrscheinlich sind. Deshalb ist die Wahrscheinlichkeit $P(E)$, dass ein Neutron der Energie E_1 nach einem Stoß eine Energie E_2 zwischen E_1 und $\alpha \cdot E_1$ aufweist:

$$P(E_2)\,dE_2 = \frac{dE_2}{E_1 - \alpha E_1} \tag{4.4}$$

Mit Hilfe dieser Gleichung lässt sich das Energiedekrement ζ als Integral berechnen:

$$\zeta = \int_{\alpha E_1}^{E_1} \ln\left(\frac{E_1}{E_2}\right) \cdot \frac{dE_2}{E_1 - \alpha E_1} \tag{4.5}$$

und führt zu folgendem Ergebnis:

$$\zeta = 1 + \frac{\alpha}{1-\alpha}\ln\alpha \tag{4.6}$$

Für A > 10 kann ζ mit einer Genauigkeit kleiner als 1 % durch folgende Näherungsformel beschrieben werden:

$$\zeta \approx \frac{2}{A + \frac{2}{3}} \tag{4.7}$$

Wenn ζ für einen Moderator bekannt ist, lässt sich die mittlere Zahl der Stöße n_m berechnen, der ein Neutron unterliegt, um von der Energie E_0 auf die Energie E_2 abgebremst zu werden. Die mittlere Zahl der Stöße, die hierfür benötigt wird, ist die Änderung des natürlichen Logarithmus der Energie, dividiert durch ζ für den entsprechenden Moderatorwerkstoff:

$$n_m = \frac{\ln \frac{E_0}{E}}{\zeta} \tag{4.8}$$

Bei dem MEDINA-Messverfahren beträgt die Primärenergie der Neutronen $E_0 \approx 14{,}1$ MeV, wobei sie in der Bestrahlungskammer auf die thermische Energie 25,3 meV moderiert werden. Im Fall von Kohlenstoff als Moderator ergibt sich, dass ca. 128 Stöße für die Moderation der aus dem Neutronengenerator emittierten Neutronen bis hin zum thermischen Niveau erforderlich sind. Weitere Werte des Parameters α, des mittleren logarithmischen Energiedekrementes ζ und der mittleren Stoßzahl n_m, sind für einige relevante Elemente in Tabelle 4.1 zusammengestellt.

Tab. 4.1: *Werte von α, ζ und n_m einiger Elemente für Moderation von 14-MeV-Neutronen auf thermische Energie von 25.3 meV.*

Element	**Nukleonenzahl** A	**Parameter** α	**Energiedekrement** ζ	**mittlere Stoßzahl** n_m
Wasserstoff	1	0	1,0	20
Deuterium	2	0,11	0,725	28
Lithium	7	0,56	0,268	75
Beryllium	9	0,64	0,209	96
Kohlenstoff	12	0,72	0,158	128
Sauerstoff	16	0,78	0,120	168
Eisen	56	0,93	0,0358	563
Uran	238	0,98	0,00838	2403

Neben dem mittleren logarithmischen Energiedekrement ζ sind zwei weitere Kennzahlen zur Charakterisierung eines Moderators zielführend: die Bremskraft und das Bremsverhältnis. Ein Moderator bremst zwar Neutronen umso schneller ab, je größer sein mittleres logarithmisches Energiedekrement ζ ist, er ist jedoch nur dann effektiv, wenn sein makroskopischer Streuquerschnitt Σ_s ebenfalls groß ist. Die Größe $\zeta\ \Sigma_s$, welche beide kernphysikalischen Eigenschaften berücksichtigt, wird Bremskraft genannt /4-3/.

Für eine gute Neutronenökonomie ist es zusätzlich wichtig, dass ein für die Bestrahlungskammer ausgewählter Moderator einen kleinen Absorptionsquerschnitt Σ_a aufweist. Um diese Eigenschaft zu berücksichtigen, wird in der Literatur /4-3/ das Bremsverhältnis $\zeta\ \Sigma_s/\Sigma_a$ definiert. Hier wird vereinfacht Σ_a für thermische Neutronenenergien eingesetzt, obwohl auch der Wirkungsquerschnitt für Neutronenabsorption in anderen Energiebereichen relevant ist. Aus dem Vergleich der Bremsverhältnisse von verschiedenen Moderatorwerkstoffen resultiert, dass schweres Wasser (D_2O) bzgl. der Neutronenökonomie der geeignetste Moderator ist (siehe Tab. 4.2).

Tab. 4.2: *Bremskraft und Bremsverhältnis von Moderatorwerkstoffen mit Anwendungen in der Kerntechnik.*

Moderator	**Dichte** [g/cm³]	**Bremskraft** [cm⁻¹]	**Bremsverhältnis** [#]
H_2O	1,00	1,35	71
D_2O	1,1	0,176	5670
Beryllium	1,85	0,158	143
Graphit	1,6	0,07	248

Für die Auswahl eines geeigneten Moderatorwerkstoffs für die Bestrahlungskammer innerhalb des MEDINA-Messverfahrens ist neben Moderationszeit und Neutronenökonomie die durch thermischen Neutroneneinfang induzierte Prompt-Gamma-Emission des Moderators relevant. Die Prompt-Gamma-Emission des Moderators kann zu einer signifikanten Untergrundstrahlung führen, welche die Empfindlichkeit einer Messung reduziert.

Würde man allein anhand der Moderationszeit und der Neutronenökonomie einen Moderatorwerkstoff aussuchen, würde man Werkstoffe mit einem möglichst guten Bremsverhältnis für Neutronen selektieren. Wasserstoffhaltige Materialien wie Wasser, hochdichter Polyethylen (HD-PE) oder schweres Wasser würden zur Anwendung kommen. Verschiedene Gruppen von Wissenschaftlern, die sich mit PGNAA beschäftigen /3-22/, wählten aus diesem Grunde meist Polyethylen als Moderator zum Bau einer Bestrahlungskammer, da es sich zusätzlich besonders gut bearbeiten lässt. Aufgrund des hohen aktiven Untergrunds ist diese Messanordnung für analytische Zwecke basierend auf der PGNAA mittels thermischer Neutronen nachteilig. Die bekannten kernphysikalischen Kenngrößen, Bremskraft und Bremsverhältnis, dienen zur Bewertung von Moderatorwerkstoffen zum Bau von kritischen Anordnungen zur Kernspaltung. Sie können jedoch für deren Eignung in der PGNAA erweitert werden. Im Rahmen dieser Arbeit wird eine neue kernphysikalische Kennzahl namens Wilhelm-Zahl w eingeführt:

$$w = \frac{\xi \cdot \Sigma_s}{\sum_{i=1}^{N_\gamma} \frac{\sigma_{E_\gamma}(E_\gamma)}{\left(\mu/\rho\right)_{E_\gamma}}} \tag{4.9}$$

Hierbei ist $\sigma_{E_\gamma}(E_\gamma)$ der partielle Wirkungsquerschnitt für eine Gamma-Emission, N_γ die Anzahl der emittierten Gamma-Quanten und $\left(\mu/\rho\right)_{E_\gamma}$ der Massenschwächungskoeffizient bei der Gamma-Energie E_γ. Bei der Wilhelm-Zahl wird die Bremskraft eines Moderators durch die Summe der partiellen Wirkungsquerschnitte der durch thermische Neutronen induzierten Gamma-Emissionen dividiert. Da ein Moderatorwerkstoff die emittierten Gamma-Quanten auch selbst abschirmt, werden die partiellen Wirkungsquerschnitte durch die Gamma-Abschwächung gewichtet. In Tab. 4.3 werden zur Berechnung der Wilhelm-Zahl für die handhabbaren Moderatorwerkstoffe Polyethylen (HD-PE) und Graphit die

Gamma-Energien E_γ und partielle Wirkungsquerschnitt $\sigma_{E_\gamma}(E_\gamma)$ für Wasserstoff und Kohlenstoff aufgeführt. Wasserstoff emittiert induziert durch thermische Neutronen zwei Gamma-Quanten und Kohlenstoff vier.

Tab. 4.3: Prompt-Gamma-Daten für Wasserstoff und Kohlenstoff

Isotop	**Prompt-Gamma-Energie E_γ [keV]**	**Partieller Wirkungsquerschnitt $\sigma(E_\gamma)$ [barn]**
H-1	2223,25	0,3326
H-2	6250,24	0,000519
C-12	1261,77	0,00124
C-12	3683,92	0,00122
C-12	4945,30	0,00261
C-13	8174,04	0,0000109

Graphit emittiert zwar mehr Gamma-Quanten als Polyethylen, jedoch sind die partiellen Wirkungsquerschnitte für diese Gamma-Quanten geringer und Graphit schwächt die emittierten Gamma-Quanten besser ab. Bei der Berechnung der Wilhelm-Zahl wird für Polyethylen die Summenformel der Wiederholeinheit C_2H_4 angenommen. Die angenommene Dichte von HD-PE und Graphit beträgt 0,95 g/cm^3 bzw. 1.6 g/cm^3. Die Ergebnisse sind in Tab. 4.4 aufgeführt.

Tab. 4.4: *Dichte, Bremskraft, Bremsverhältnis und Wilhelm-Zahl von Polyethylen und Graphit*

Moderator	**Dichte [g/cm^3]**	**Bremskraft [cm-1]**	**Bremsverhältnis [#]**	**Wilhelm-Zahl [#]**
HD-PE	0,95	0,34	249	0,30
Graphit	1,6	0,07	248	0,72

Die Moderatorwerkstoffe weisen nahezu das gleiche Bremsverhältnis auf. Die Wilhelm-Zahl von Graphit beträgt 0,72 und von Polyethylen 0,3. Somit verschiebt sich die Tauglichkeit für einen guten Moderatorwerkstoff zum Bau einer Bestrahlungskammer zwecks analytischer Messungen bei der Anwesenheit thermischer Neutronen zu Gunsten des Graphits. Graphit ist als Moderator zum Bau von analytischen Messanordnungen in der PGNAA Polyethylen um den Faktor 2,4 überlegen.

Aufgrund des erhöhten Untergrunds der prompten Gamma-Emissionen von wasserstoffhaltigen Moderatoren wurde bei der MEDINA-Bestrahlungskammer Graphit als Moderatorwerkstoff selektiert und der Einsatz von wasserstoffhaltigen Materialien bei der Errichtung der Bestrahlungskammer wenn möglich vermieden.

4.2 Gepulste Neutronen-Aktivierungs-Analyse

Während der Pulslänge t_p werden 14-MeV-Neutronen emittiert, welche sofort nach ihrer Entstehung mit der umgebenden Materie wechselwirken. Diese Wechselwirkungen haben eine Verringerung der kinetischen Energie der Neutronen zur Folge. Mit der Reduzierung der kinetischen Energie der Neutronen steigt die Wahrscheinlichkeit, dass die Neutronen von Atomkernen eingefangen werden und somit in einem Atomkern eingebunden werden. Simultan zu dem Neutroneneinfang wird charakteristische Prompt-Gamma-Strahlung emittiert. Nach dem Ende eines Neutronenpulses werden keine weiteren Neutronen aus der Quelle emittiert. Die gemittelte Energie der Neutronen innerhalb einer Bestrahlungskammer, das Neutronenenergiespektrum, ist somit zeitabhängig und wird durch die Moderationseigenschaften einer Bestrahlungskammer und der Probe bestimmt.

Die zyklische Bestrahlung mit schnellen Neutronen und anschließender Moderation der Neutronen auf ein thermisches Niveau verursacht somit sämtliche neutroneninduzierte Kernreaktionen, deren Schwellenwert unterhalb 14 MeV liegen (siehe Tab. 4.5).

Tab. 4.5: *Beispiele von Schwellenwertreaktionen unterhalb von Neutronenenergien von 14 MeV /4-1/.*

Reaktion	**Schwellenwertenergie [MeV]**
Spaltung von ^{234}U	0,3
Spaltung von ^{236}U	0,7
Spaltung von ^{238}U	1,3
^{27}Al(n,p)^{27}Mg	1,9
^{56}Fe(n,p)^{56}Mn	3,0
^{27}Al(n,α)^{24}Na	3,3
^{24}Mg(n,p)^{24}Na	4,9
^{65}Cu(n,2n)^{64}Cu	10,1
^{58}Ni(n,2n)^{57}Ni	12,0

Während und direkt nach einem 14-Mev-Neutronenpuls enthält dieses Neutronenenergiespektrum einen hochenergetischen Anteil, der sich bei fortschreitender Moderationszeit reduziert (siehe Abb. 4.1).

Die über die emittierten Neutronen gemittelte Zeitdauer von der Entstehung der Neutronen bis zu deren Einfang in Atomkernen wird als Lebensdauer der Neutronen bezeichnet. Neben der Startenergie der Neutronen ist sie von der umgebenden Materie, definiert durch die Elementzusammensetzung, Dichte und geometrischen Abmessungen bestimmt. Die Lebensdauer der Neutronen wird in der MEDINA-Bestrahlungskammer durch die Werkstoffe der Bestrahlungskammer dominiert. Wird nur die Zeitdauer, bis die bereits thermalisierten Neutronen von Atomkernen eingefangen werden, betrachtet, bezeichnet man dies als die Lebensdauer der thermischen Neutronen.

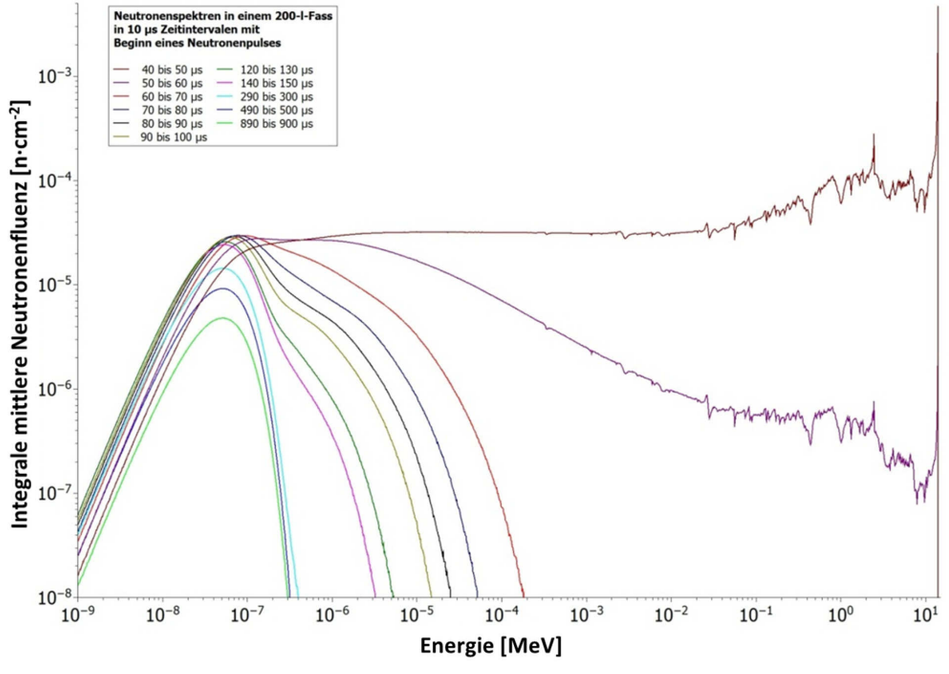


Abb. 4.1: *MCNP-Simulation des zeitabhängigen Neutronenspektrums in einem 200-l-Fass gefüllt mit einer Betonmatrix innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer.*

Im Fall, dass die Lebensdauer der thermischen Neutronen innerhalb der Bestrahlungskammer länger als die Pulsperiode T ist, baut sich, wie in Abb. 4.2 dargestellt, nach mehreren Neutronenpulsen ein nahezu konstanter thermischer Neutronenfluss innerhalb der Bestrahlungskammer auf. Die mittlere thermische Lebensdauer L_m (engl.: neutron die-away time) beschreibt das exponentielle Abklingverhalten des thermischen Neutronenflusses Φ_{th} über die Zeit t:

$$\Phi_{th}(t) = \Phi_0^{-\frac{t}{L_m}} \tag{4.10}$$

Die Abb. 4.2 stellt die Akkumulation des Neutronenflusses durch die zyklischen Neutronenpulse und die eintretende Sättigung des thermischen Neutronenflusses für den Fall dar, dass die Pulsperiode T kleiner als die mittlere Lebensdauer der thermischen Neutronen ist. Für die Darstellung wurde das in der MEDINA-Bestrahlungskammer experimentell ermittelte Abklingverhalten des Neutronenflusses bei einer Pulslänge $t_p = 50$ µs, einer Pulsperiode $T = 1000$ µs und einer mittlere Lebensdauer der thermischen Neutronen von 1620 µs dargestellt (siehe Kap. 7.7). Die im Diagramm eingetragene Ausgleichskurve approximiert den integralen mittleren thermischen Neutronenfluss zwischen den Neutronenpulsen. Die Skala des thermischen Neutronenflusses ist auf den maximalen Neutronenfluss nach einem Einzelpuls normiert.

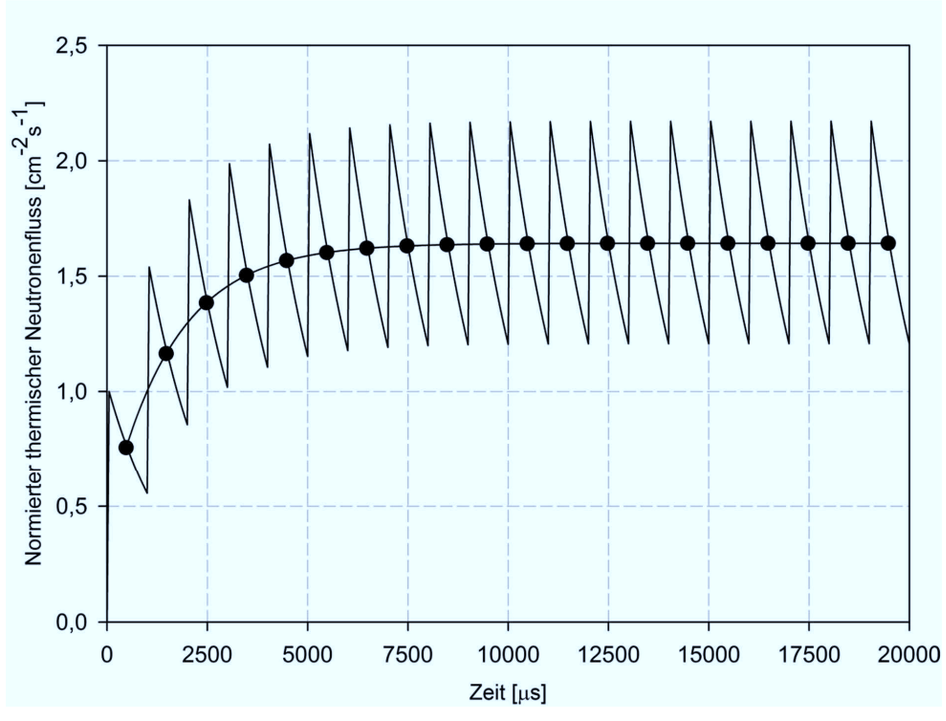


Abb. 4.2: *Sättigung des thermischen Neutronenflusses, wobei die Pulsperiode T kleiner als die mittlere Lebensdauer der thermischen Neutronen ist. Die ausgefüllten Punkte stellen den mittleren thermischen Neutronenfluss zwischen den Neutronenpulsen dar.*

Die am Neutronengenerator eingestellte Pulsperiode von 1000 µs führt in Zusammenhang mit dem Abklingverhalten für thermische Neutronen in der MEDINA-Bestrahlungskammer dazu, dass der integrale mittlere thermische Neutronenfluss in der Sättigung 60 % höher als der integrale mittlere thermische Neutronenfluss nach einem einzelnen Neutronenpuls ist. Diese Sättigung wird ca. 7000 µs nach Bestrahlungsbeginn erreicht.

Für die weiteren Ausführungen von neutroneninduzierten Kernreaktionen ist eine vereinfachte Klassifizierung nach schnellen oder thermischen Neutronen sinnvoll. Beispiele von Kernreaktionen innerhalb dieser Klassifizierung sind in Abb. 4.3 aufgeführt. Obwohl die Kernreaktionen mit thermischen Neutronen die höheren Wirkungsquerschnitte aufweisen, interagieren auch schon 14-MeV-Neutronen mit den meisten Isotopen. Typische (n,γ)-Wirkungsquerschnitte bei dieser Energie haben Werte unterhalb von 10 mb. Für die Kernreaktionen (n,n´), (n,2n), (n,p), (n,α) sind mit schnellen Neutronen meist Wirkungsquerschnitte bis 1 barn tabuliert /3-5/.

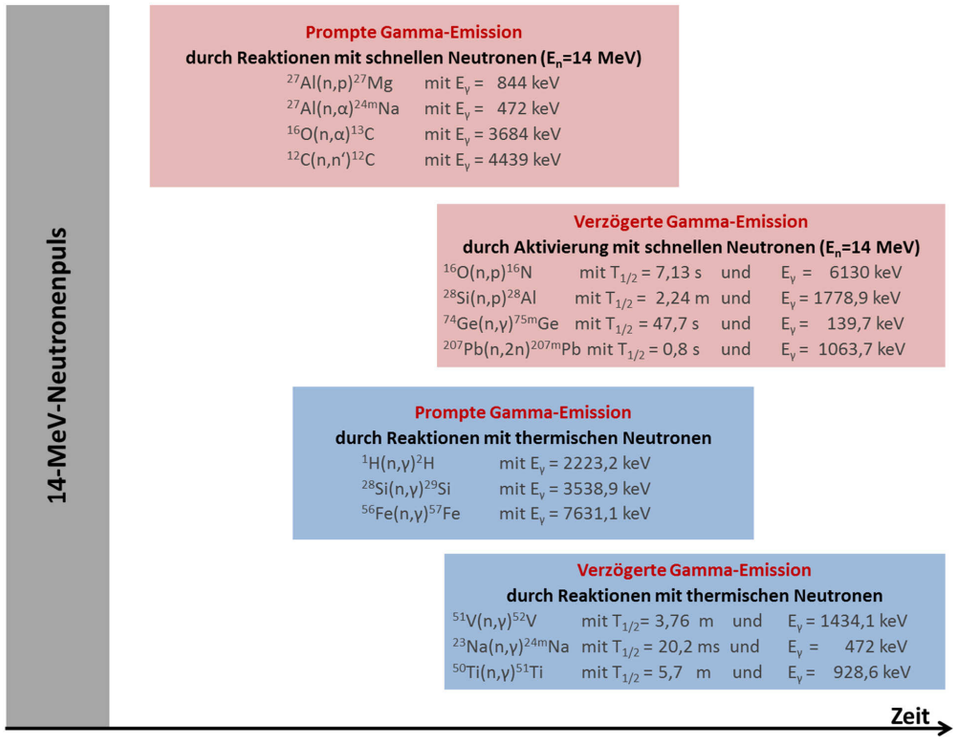


Abb. 4.3: *Beispiele für neutroneninduzierte Kernreaktionen bei der zyklischen Neutronen-Aktivierung-Analyse verursacht durch schnelle und thermische Neutronen.*

Alle neutroneninduzierten Kernreaktionen mit einer Schwellwertreaktion unterhalb von 14 MeV können bei MEDINA zu analytischen Zwecken genutzt werden. Diese fortgeschrittene Variante der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse wird als PTFNA, Pulsed Fast and Thermal Neutron Activation bezeichnet /3-13/. Zur Erkennung z. B. des Isotops ^{12}C können mit einem geeigneten Spektrometer während der Pulslänge t_p die prompten Gamma-Quanten mit einer Energie von 4439 keV und einem Wirkungsquerschnitt von 179 mb aus der inelastischen Streuung von 14-MeV-Neutronen am Kohlenstoffisotop und nachfolgend die prompten Gamma-Quanten mit einer Energie von 4945,3 keV und einem Wirkungsquerschnitt von 2,61 mb aus dem Einfang thermischer Neutronen detektiert werden.

Ähnlich kann z. B. ^{28}Si anhand der Kernreaktion $^{28}Si(n,p)^{28}Al$ induziert durch schnelle Neutronen mit einem Wirkungsquerschnitt von 232 mb und der Messung der verzögerten Gamma-Quanten emittiert vom ^{28}Al mit einer Energie von 1778,9 keV ebenso detektiert werden, wie durch eine Aktivierung mit thermischen Neutronen. Die Aktivierung mit thermischen Neutronen über die Kernreaktion $^{28}Si(n,\gamma)^{29}Si$ emittiert prompte Gamma-Quanten mit einer Energie von 3538,9 keV, weist jedoch nur einem Wirkungsquerschnitt von 119 mb auf (siehe Abb. 4.3).

Bei sämtlichen zur Analyse herangezogenen detektierten Gamma-Quanten müssen mögliche Interferenzen berücksichtigt werden. So ist z. B. bei der für den Nachweis von Silizium genannten Kernreaktion $^{28}Si(n,p)^{28}Al$ eine Interferenz der durch thermische Neutronen induzierten Kernreaktion $^{27}Al(n,\gamma)^{28}Al$ zu beachten. Das gleiche gilt auch vice versa.

Die Empfindlichkeit einer Messung hängt neben der Wahrscheinlichkeit einer Kernreaktion und möglichen Interferenzen der detektierten prompten oder verzögerten Gamma-Quanten von den festen Bestrahlungsparametern sowie den variablen Bestrahlungs- und Messparametern ab. Feste Bestrahlungsparameter sind Messgeometrie, Probengröße, Probenzusammensetzung, Probenhomogenität sowie Moderationseigenschaften und Aktivierung der Bestrahlungskammer. Die variablen Bestrahlungs- und Messparameter sind die Pulslänge t_p, die Pulsperiode T, die Bestrahlungszeit, die Messzeit t_c, die Wartezeit t_w zwischen Ende des Neutronenpulses und dem Beginn der Datenakquisition und der Neutronenfluss. Durch die zyklische Neutronenbestrahlung können im Vergleich zu einer Dauerbestrahlung für den Nachweis von bestimmten Elementen höhere Empfindlichkeiten erreicht werden.

Im MEDINA-Messverfahren wird die PGNAA mit thermischen Neutronen als Basisverfahren angewandt, wobei in diesem Fall die variablen Bestrahlungsparameter so gewählt werden, dass die Pulsperiode T kleiner als die mittlere thermische Lebensdauer L_m ist. Eine Optimierung des MEDINA-Messverfahrens im Hinblick auf eine selektive Messung der verzögerten Gamma-Quanten (DGNAA) erfolgt durch die geeignete Auswahl der variablen Bestrahlungs- und Messparameter, welche in Konsequenz zu einem verminderten Compton-Untergrund und einer Verbesserung des Signal-zu-Untergrund-Verhältnis führt /3-7/. Die Möglichkeit, eine Messung auf eine für den Nachweis genutzte Kernreaktion anpassen zu können, ist eine Stärke des MEDINA-Messverfahrens. Der Nachweis von prompten und verzögerten Gamma-Emissionen aus Kernreaktionen mit thermischen Neutronen und verzögerten Gamma-Emissionen aus Kernreaktionen mit schnellen Neutronen ermöglicht die gezielte Identifizierung bestimmter Elemente. Zur Überprüfung der Quantifizierung einer Elementmasse können verschiedene Kernreaktionen herangezogen werden.

Die Quantifizierung bzgl. der Element- und Isotopenzusammensetzung einer Probe erfolgt anhand der Analyse der aufgenommen Gamma-Spektren resultierend aus der zyklischen Neutronen-Aktivierung einer Probe. Die Elementmasse in einer zu untersuchenden Probe wird nach dem Abzug des Untergrundsignals aus der Netto-Fläche des Photopeaks bestimmt, den die für das Element charakteristische prompte oder verzögerte Gamma-Strahlung der Energie E_γ im Spektrum hervorruft. Diese Netto-Photopeakfläche P_{E_γ} eines Peaks wird durch folgende Gleichung beschrieben:

$$P_{E_\gamma} = \frac{m}{M} N_A \cdot \sigma_{E_\gamma} \cdot \Phi \cdot \varepsilon_{E_\gamma} \cdot f_t \qquad (4.11)$$

Hierin ist m die Masse des Elements, M die molare Masse des Elements, N_A die Avogadrokonstante, σ_{E_γ} der partielle Wirkungsquerschnitt, Φ der Neutronenfluss, ε_{E_γ} die Photopeak-Effizienz und f_t ein Zeitfaktor, der die Bestrahlungsparameter wie Pulsdauer, Pulsperiode und Wartezeit nach einem Neutronenpuls beschreibt.

Für den thermischen Neutroneneinfang ist der partielle Wirkungsquerschnitt $\sigma_{E_\gamma,th}$ definiert als Produkt des Absorptionsquerschnitts für thermische Neutronen $\sigma_{n,th}$ mit der Isotopenhäufigkeit des Photonen emittierenden Isotops h und der Wahrscheinlichkeit des Isotops für die jeweilige Photonenproduktion I_{E_γ}:

$$\sigma_{E_\gamma,th} = \sigma_{n,th} \cdot h \cdot I_{E_\gamma} \tag{4.12}$$

Der partielle Wirkungsquerschnitt für die Aktivierung mit epithermischen Neutronen $\sigma_{E_\gamma,epi}$ ist gleich dem Produkt des Resonanzintegrals $I_{Res} = \sigma_{n,epi}$ mit der Isotopenhäufigkeit des Photonen emittierenden Isotops h und der Wahrscheinlichkeit des Isotops für die jeweilige Photonenproduktion I_{E_γ}:

$$\sigma_{E_\gamma,epi} = I_{Res} \cdot h \cdot I_{E_\gamma} \tag{4.13}$$

Der partielle Wirkungsquerschnitt für die Aktivierung mit schnellen Neutronen $\sigma_{E_\gamma,fast}$ ist als Produkt des Absorptionsquerschnitts für schnelle Neutronen $\sigma_{n,fast}$ mit der Isotopenhäufigkeit des Photonen emittierenden Isotops h und der Wahrscheinlichkeit des Isotops für die jeweilige Photonenproduktion I_{E_γ} definiert:

$$\sigma_{E_\gamma,fast} = \sigma_{n,fast} \cdot h \cdot I_{E_\gamma} \tag{4.14}$$

Die Photopeak-Effizienz ε_{E_γ} hängt von der Gamma-Energie E_γ, den Detektoreigenschaften, den Probeneigenschaften (Größe, Homogenität, Elementzusammensetzung) und der Messgeometrie ab. Der Zeitfaktor f_t ist neben den variablen Bestrahlungsparametern davon abhängig, ob die emittierte prompte oder verzögerte Gamma-Strahlung durch eine Kernreaktion mit thermischen oder schnellen Neutronen induziert wird. In Abhängigkeit der Bestrahlungsparameter und der Datenakquisition ergeben sich aus Gleichung 4.11 insgesamt acht Fälle für eine Elementquantifizierung bei der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse, die nachfolgend erörtert werden.

4.3 Fälle der Elementquantifizierung bei der zyklischen Neutronen-Aktivierung-Analyse

Bei der zyklischen Neutronen-Aktivierung-Analyse ergeben sich in Abhängigkeit von den Bestrahlungsparametern der Pulsdauer t_p und der Neutronenpulsperiode T, vom Zeitpunkt der Spektrenaufnahme, der mittleren thermischen Lebensdauer L_m bzw. der Lebensdauer der thermischen Neutronen L fünf verschiedene Fälle der Neutronen-Aktivierungs-Analyse während der Bestrahlung (online) und drei Fälle nach der Bestrahlung (offline), die für eine quantitative Elementarbestimmung gemäß Gleichung 4.11 genutzt werden können. Für jeden dieser acht Fälle wird im Weiteren der Zeitfaktor f_t definiert.

Fall 1: PGNAA mit schnellen Neutronen (online)

Im 1. Fall werden Atomkerne durch Wechselwirkungen mit schnellen Neutronen identifiziert. Das Gammaspektrum wird simultan zu der Emission der 14-MeV-Neutronen aufgenommen (online). Die Dauer der Datenakquisition t_c zur Spektrenaufnahme ist gleich der Dauer der Pulslänge der Neutronenquelle t_p (siehe Abb. 4.4 und 4.5).

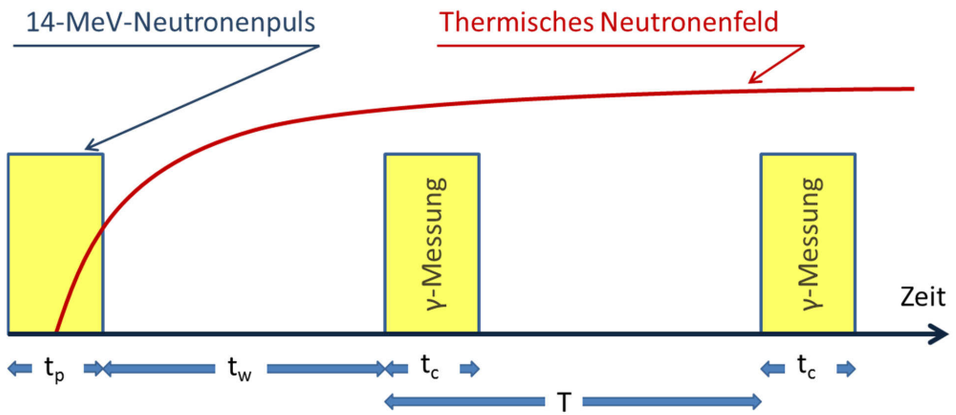


Abb. 4.4: Fall 1 – PGNAA mit schnellen Neutronen (online, $T < L_m$), *L_m: Mittlere thermische Lebensdauer der Neutronen, t_p: Pulsdauer, t_c: Messfensters für Spektrenakquisition, t_w: Wartezeit.*

Da für die Dauer des Neutronenpulses stetig ein Anteil schneller Neutronen existiert, eignet sich dieser Fall der PGNAA zum Nachweis von Kernreaktionen mit einem hohen Wirkungsquerschnitt für schnelle Neutronen, wie z. B. die Detektion prompter Gamma-Quanten aus inelastischen Streuungen. Beispielsweise beträgt der partielle Wirkungsquerschnitt für eine inelastischen Streuung am Sauerstoffisotop ^{16}O, bei der prompte Gamma-Quanten mit einer Energie von 6130 keV emittiert werden, 147 mb. Der größte partielle Wirkungsquerschnitt für einen thermischen Neutroneneinfang von Sauerstoff ist mit 17,7 mb (E_γ = 870,7 keV) ca. um Faktor 8 geringer. Sauerstoff könnte somit bei den entsprechenden Randbedingungnen mit einer besseren Empfindlichkeit durch die PGNAA mit schnellen

Neutronen nachgewiesen werden. Nachteilig für den Nachweis solcher Reaktionen innerhalb des MEDINA-Messverfahrens ist die hohe Untergrundstrahlung verursacht durch prompte Gamma-Quanten aus inelastischen Streuungen am Kohlenstoff. Der in der MEDINA-Anlage verwendete HPGe-Detektor wird durch die hohen Zählraten in dem Zeitfenster während und kurz nach einem 14-MeV-Neutronenpuls gesättigt und ermöglicht somit keine aussagekräftige Spektralanalyse. Der Nachweis von Kernreaktionen mit schnellen Neutronen ist nur anhand eines Spektrometers mit hoher Zeitauflösung oder einer sehr guten Abschirmung des Detektors möglich.

Eine Erhöhung der Sensitivität für den Nachweis von Kernreaktionen induziert durch schnelle Neutronen ist durch eine Variation der Pulsperiode möglich. Hierzu stellt man die Pulsperiode T innerhalb des MEDINA-Messverfahrens so ein, dass die Pulsperiode T größer als die Lebenszeit der thermischen Neutronen L ist (siehe Abb. 4.5). Somit existieren während des Messfensters für die Datenakquisition t_c keine thermischen Neutronen bzw. prompte Gamma-Quanten induziert durch thermische Neutronen, welche ein zusätzliches unerwünschtes Signal zu den prompten Gamma-Quanten mit schnellen Neutronen verursachen würden.

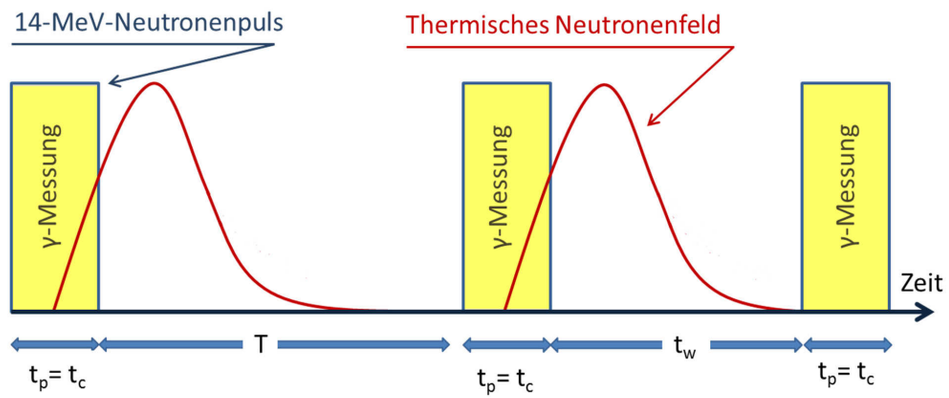


Abb. 4.5: Fall 1 – PGNAA mit schnellen Neutronen (online, T > L), *T: Pulsperiode, L: Lebensdauer der thermischen Neutronen, t_p: Pulsdauer, t_c: Messfensters für Spektrenakquisition, t_w: Wartezeit.*

Zur Bestimmung der Netto-Photopeakfläche gemäß Gl. 4.11 wird im Fall der PGNAA mit schnellen Neutronen der Wirkungsquerschnitt $\sigma_{E_\gamma, fast}$ und der mittlere Neutronenfluss Φ_{fast} auf den hochenergetischen Bereich der Neutronen angepasst. Hieraus folgt:

$$P_{1,E_\gamma} = \frac{m}{M} \cdot N_A \cdot \sigma_{E_\gamma, fast} \cdot \varepsilon_{E_\gamma} \cdot \Phi_{fast} \cdot f_{t,1} \tag{4.15}$$

Der Zeitfaktor $f_{t,1}$ ist in diesem Fall die Bestrahlungszeit mit schnellen Neutronen, welche sich aus der Anzahl der Pulse n multipliziert mit der Pulslänge t_p ergibt:

$$f_{t,1} = n \cdot t_p \tag{4.16}$$

Fall 2: DGNAA mit schnellen Neutronen (online)

Im 2. Fall werden Atomkerne mit schnellen Neutronen aktiviert. Die gebildeten Aktivierungsprodukte emittieren gemäß ihrer Halbwertszeit verzögerte Gamma-Quanten, welche in diesem Fall nachgewiesen werden. Zum Nachweis der verzögerten Gamma-Quanten kann das Spektrum entweder während des Abklingens des thermischen Neutronenflusses (Abb. 4.6, linker gelber Kasten mit Inschrift γ-Messung) oder nachdem keinen thermischen Neutronen vorhanden sind (Abb. 4.6, rechter gelber Kasten mit Inschrift γ-Messung) aufgenommen werden. Allerdings wird das Verhältnis von Photopeakfläche zum Untergrund in Abwesenheit thermischer Neutronen besser sein, da zu diesem Zeitpunkt keine prompten Gamma-Quanten mehr detektiert werden.

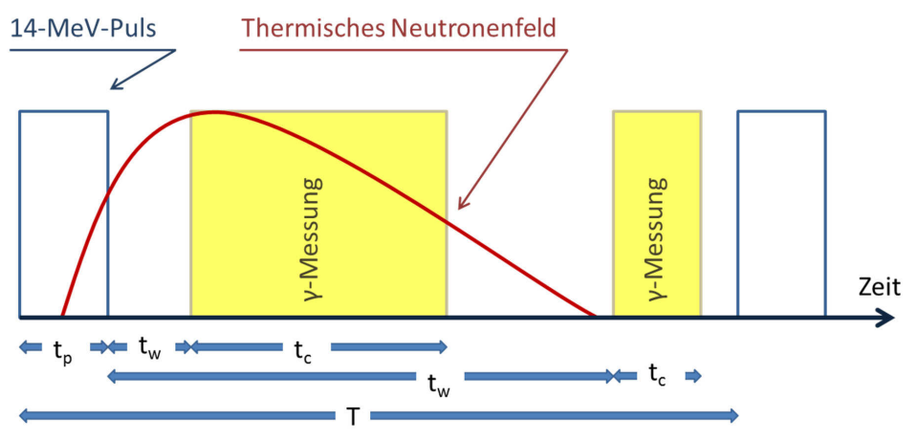


Abb. 4.6: Fall 2 - Aktivierung mit schnellen Neutronen und verzögerter Gamma-Emission (online, T > L). *Datenakquisition nach der Wartezeit t_w, wobei für diesen Fall unerheblich ist, ob die Pulsperiode T größer/kleiner ist als die Lebensdauer der thermischen Neutronen innerhalb der Bestrahlungskammer L. Das Bild stellt den Fall T > L dar.*

Zur Bestimmung der Netto-Photopeakfläche gemäß Gl. 4.11 wird im Fall der DGNAA mit schnellen Neutronen der partielle Wirkungsquerschnitt $\sigma_{E_\gamma, fast}$ und der Neutronenfluss Φ_{fast} auf den hochenergetischen Bereich der Neutronen angepasst. Hieraus folgt:

$$P_{2,E_\gamma} = \frac{m}{M} \cdot N_A \cdot \sigma_{E_\gamma, fast} \cdot \varepsilon_{E_\gamma} \cdot \Phi_{fast} \cdot f_{t,2} \tag{4.17}$$

Der Zeitfaktor $f_{t,2}$ ist im Fall der Online-Messung der verzögerten Gamma-Emissionen durch kumulierte Aktivierung mit schnellen Neutronen von den variablen Bestrahlungsparametern t_p, t_w, t_c, n, T und der Zerfallskonstante λ_t abhängig /1-5/:

$$f_{t,2} = \lambda_t^{-1}\left(1-e^{-\lambda_t t_p}\right)\cdot\left(e^{-\lambda_t t_w}\right)\cdot\left(1-e^{-\lambda_t t_c}\right)\cdot\left[\frac{n}{1-e^{-\lambda_t T}} - \frac{e^{-\lambda_t T}\cdot\left(1-e^{-n\lambda_t T}\right)}{\left(1-e^{-\lambda_t T}\right)^2}\right] \tag{4.18}$$

Elemente, welche durch diesen Fall der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse gut nachgewiesen werden können, sind z. B. Blei oder Silizium. Diese Elemente können durch die Kernreaktionen ^{207}Pb(n,2n)^{207m}Pb und ^{28}Si(n,p)^{28}Al bestimmt werden. Bei diesen Kernreaktionen werden die verzögerten Gamma-Quanten von ^{207m}Pb mit einer Halbwertszeit von 0,8 s und einer Energie von 1063,7 keV und von ^{28}Al mit einer Halbwertszeit von 2,24 m und einer Energie von 1778,9 keV gemessen. Die verschiedenen Halbwertszeiten dieser zwei beispielhaften Kernreaktionen demonstrieren, dass dieser Fall der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse auf jede Kernreaktion bzgl. der Pulslänge t_p und der Pulsperiode T und der Wartezeit t_w der zyklischen Neutronen-Aktivierung optimiert werden kann.

Fall 3: DGNAA mit schnellen Neutronen (offline)

Im 3. Fall der DGNAA induziert durch schnelle Neutronen wird das Messfenster für die Aufnahme des Gammaspektrums erst nach Ende der zyklischen Neutronenbestrahlung und somit erst nach dem letzten Neutronenpuls und der Wartezeit t_w geöffnet (offline). Die Messung findet offline nach der Abschaltung des Neutronengenerators statt. Während der Bestrahlung mit schnellen Neutronen werden Nuklide aktiviert, wobei sich die gebildete Aktivität der Radionuklide über den Bestrahlungszeitraum akkumuliert. Die Wartezeit zum Beginn der Offline-Messung wird nun optimal so gewählt, dass der thermische Neutronenfluss abgeklungen ist und somit keine prompte Gamma-Emission mehr stattfindet (siehe Abb. 4.7). Hierdurch wird der Untergrund zur Messung der verzögert zerfallenden Radionuklide reduziert.

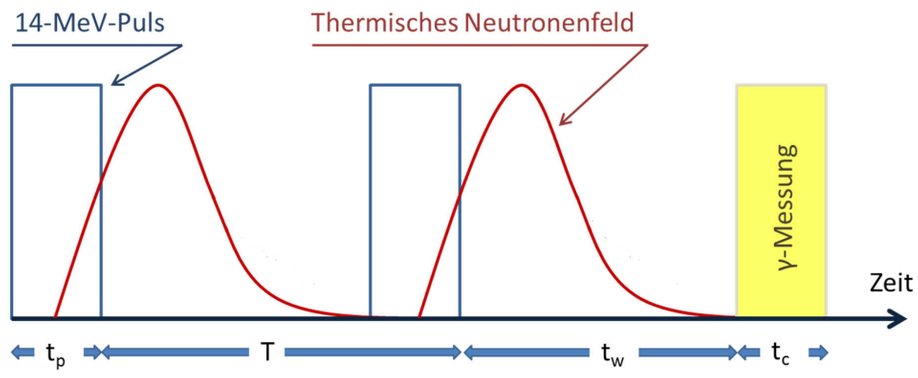


Abb. 4.7: Fall 3 - Aktivierung mit schnellen Neutronen und verzögerter Gamma-Emission (offline, T > L). *Datenakquisition nach Ende der zyklischen Neutronenbestrahlung und der Wartezeit.*

Bei einer Offline-Messung der verzögerten Aktivität durch die Aktivierung mit schnellen Neutronen ergibt sich für die Netto-Photopeakfläche folgender Ausdruck:

$$P_{3,E_\gamma} = \frac{m}{M} \cdot N_A \cdot \sigma_{E_\gamma,fast} \cdot \varepsilon_{E_\gamma} \cdot \Phi_{fast} \cdot f_{t,3} \tag{4.19}$$

Der Zeitfaktor $f_{t,3}$ ist im Fall der Offline-Messung der verzögerten Gamma-Emissionen durch kumulierte Aktivierung mit schnellen Neutronen von den variablen Bestrahlungsparametern t_p, t_w, t_c, n, T und der Zerfallskonstante λ_t abhängig /4-2/:

$$f_{t,3} = \left(1 - e^{-\lambda_t t_p}\right) e^{-\lambda t_w} \cdot \frac{\left(1 - e^{-n\lambda_t T}\right)}{\left(1 - e^{-\lambda_t T}\right)} \cdot \frac{1 - e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t} \tag{4.20}$$

Elemente, die durch eine Offline-Messung der verzögerten Aktivität anhand der zyklischen Aktivierung mit schnellen Neutronen sensitiv nachgewiesen werden können, sind z. B. Natrium, Aluminium oder Chrom. Diese Elemente können durch die Kernreaktionen ^{23}Na(n,α)^{20}F, ^{27}Al(n,p)^{27}Mg, oder ^{52}Cr(n,p)^{52}V bestimmt werden. Bei diesen Kernreaktionen werden z. B. die verzögerten Gamma-Quanten von ^{20}F mit einer Halbwertszeit von 11 s und einer Energie von 1064 keV, von ^{52}V mit einer Halbwertszeit von 3,75 m und einer Energie von 1434 keV und von ^{27}Mg mit einer Halbwertszeit von 9,46 m und einer Energie von 844 keV detektiert. Dieser 3. Fall der Neutronen-Aktivierungs-Analyse eignet sich für den Nachweis von Aktivierungsprodukten, deren Halbwertszeit im Sekunden bis Stunden Bereich liegt, da im Vergleich zum 2. Fall für diese Elemente erst am Ende der Bestrahlung eine erhöhte Aktivität akkumuliert wird.

Fall 4: PGNAA mit thermischen Neutronen (online)

Im 4. Fall werden Prompt-Gamma-Quanten gemessen, die durch den Kerneinfang thermischer Neutronen induziert werden. Ist in dem Fall die Pulsperiode T kleiner als die Lebensdauer der thermischen Neutronen innerhalb der Bestrahlungskammer L, stellt sich nach wenigen Neutronenpulsen ein konstanter thermischer Neutronenfluss ein (siehe Abb. 4.2). Im MEDINA-Messverfahren wird die PGNAA mit thermischen Neutronen als Basisverfahren angewandt, wobei in diesem Fall die variablen Bestrahlungsparameter so gewählt werden, dass die Pulsperiode T kleiner als die Thermalisierungskonstante κ ist. Das Verhältnis zwischen der kurzen Thermalisierungszeit der Neutronen von ca. 1 ms und der Lebensdauer der thermischen Neutronen innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer bzw. dem zu untersuchenden Fass von ca. 15 ms führt bei der hohen Repetitionsrate der Neutronenpulse dazu, dass sich nach mehreren Neutronenpulsen ein stabiler thermischer Neutronenfluss innerhalb der Bestrahlungskammer einstellt. Die Lebensdauer der thermischen Neutronen L wird durch die Graphitmasse der Bestrahlungskammer und durch die Moderationseigenschaften der Probe bestimmt. Die Wartezeit t_w wird so gewählt, dass die aus der Neutronenquelle emittierten Neutronen thermalisiert sind, bevor das Messfenster t_c zur Spektrumaufnahme geöffnet wird (siehe Abb. 4.8). Das Messfenster wird vor dem nächsten Neutronenpuls geschlossen. Die Gamma-Spektren, die gemäß diesem 4. Fall aufgenommen werden, ermöglichen die Identifizierung der meisten Elemente.

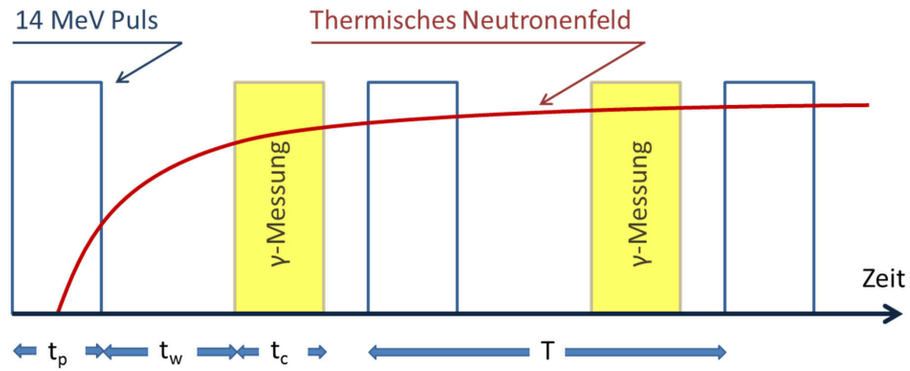


Abb. 4.8: Fall 4 – PGNAA mit thermischen Neutronen *und Datenakquisition nach der Wartezeit t_w, wobei die Pulsperiode T kleiner als die mittlere thermische Lebensdauer L_m der Neutronen innerhalb der Bestrahlungskammer ist ($T < L_m$).*

Zur Bestimmung der Netto-Photopeakfläche gemäß Gl. 4.11 werden für die PGNAA mit thermischen Neutronen der partielle Wirkungsquerschnitt für die Photonenproduktion $\sigma_{E_\gamma,th}$ und der mittlere Neutronenfluss Φ_{th} auf den thermischen Energiebereich des Neutronenspektrums angepasst. Es folgt:

$$P_{4,E_\gamma} = \frac{m}{M} \cdot N_A \cdot \sigma_{E_\gamma,th} \cdot \varepsilon_{E_\gamma} \cdot \Phi_{th} \cdot f_{t,4} \tag{4.21}$$

Der Zeitfaktor $f_{t,4}$ ist in diesem Fall die Anzahl der Pulse n multipliziert mit der Länge des Messfensters t_c:

$$f_{t,4} = n \cdot t_c \tag{4.22}$$

Elemente, die durch die PGNAA mit thermischen Neutronen identifiziert werden können, sind z. B. Wasserstoff, Arsen, Selen oder Cadmium. Diese Elemente können durch die Kernreaktionen $^{1}H(n,\gamma)^{2}H$, $^{75}As(n,\gamma)^{76}As$, $^{76}Se(n,\gamma)^{77}Se$ und $^{113}Cd(n,\gamma)^{114}Cd$ nachgewiesen werden. Bei diesen Kernreaktionen werden beispielsweise die prompten Gamma-Quanten von ^{1}H mit einer Energie von 2223,2 keV (σ_{E_γ} = 0,3326 b), von ^{75}As mit einer Energie von 6810,9 keV (σ_{E_γ} = 0,56 b), von ^{76}Se mit einer Energie von 6600,7 keV (σ_{E_γ} = 0,623 b) und ^{113}Cd mit einer Energie von 558,3 keV (σ_{E_γ} = 1860 b) emittiert.

Fall 5: DGNAA mit thermischen Neutronen (online, $T < L_m$)

Im 5. Fall werden verzögerte Gamma-Quanten gemessen, die aus dem Zerfall der durch thermischen Neutroneneinfang gebildeten Aktivierungsprodukte entstanden sind. Die Messung der verzögerten Gamma-Quanten erfolgt simultan mit der Messung der prompten Gamma-Quanten, wobei in diesem Fall die Pulsperiode T kleiner als die mittlere Lebensdauer L_m der thermischen Neutronen in der Bestrahlungskammer eingestellt wird (siehe Abb. 4.9). Zur Bestimmung der Netto-Photopeakfläche gemäß

Gl. 4.11 werden im Fall der DGNAA mit thermischen Neutronen die Ereignisse der Einzelperioden zu einer kumulierten Photopeakfläche aufaddiert.

Der partielle Wirkungsquerschnitt für die Photonenproduktion $\sigma_{E_\gamma,th}$ und der mittlere Neutronenfluss Φ_{th} werden auf den thermischen Energiebereich des Neutronenspektrums angepasst. Hieraus folgt:

$$P_{5,E_\gamma} = \frac{m}{M} \cdot N_A \cdot \sigma_{E_\gamma,th} \cdot \varepsilon_{E_\gamma} \cdot \Phi_{th} \cdot f_{t,5} \tag{4.23}$$

Die Reihenentwicklung der kumulierten Ereignisse führt zu dem Zeitfaktor $f_{t,5}$, welcher im Fall der verzögerten Gamma-Neutronen-Aktivierung mit thermischen Neutronen von den variablen Bestrahlungsparametern t_p, t_w, t_c, n, T ebenfalls von der Zerfallskonstante λ_t des Aktivierungsprodukts abhängig ist /4-2/:

$$f_{t,5} = \lambda_t^{-1} \cdot \left[\frac{1-e^{-\lambda_t\left(t_p+t_w\right)}}{\lambda_t} \cdot \left(n - e^{-\lambda_t \cdot (t_p+t_w)} \cdot \frac{1-e^{-\lambda_t nT}}{1-e^{-\lambda_t T}} \right) + n \cdot t_c \cdot \left(1 - \frac{e^{-\lambda_t t_c}}{\lambda_t t_c} \right) \right] \tag{4.24}$$

Elemente, die durch die DGNAA mit thermischen Neutronen sensitiv nachgewiesen werden können, sind z. B. Vanadium und Titan. Diese Elemente können durch die Kernreaktionen $^{51}V(n,\gamma)^{52}V$ und $^{50}Ti(n,\gamma)^{51}Ti$ nachgewiesen werden. Die Aktivierungsprodukte ^{52}V und ^{51}Ti haben eine Halbwertzeit von 3,75 m und 5,76 m. Bei diesen Kernreaktionen werden beispielsweise die verzögerten Gamma-Quanten von ^{52}V mit einer Energie von 1434,1 keV und ^{51}Ti mit einer Energie von 320,1 keV detektiert.

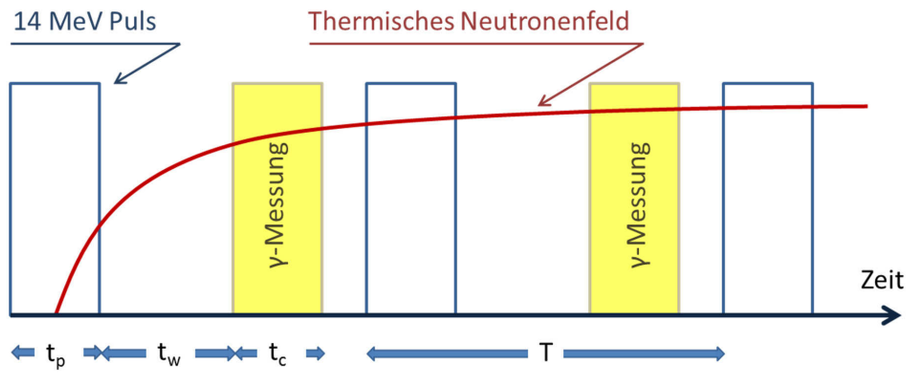


Abb. 4.9: Fall 5 – DGNAA mit thermischen Neutronen. *Datenakquisition nach der Wartezeit t_w, wobei die Pulsperiode T kleiner als die mittlere thermische Lebensdauer L_m der Neutronen innerhalb der Bestrahlungskammer ist ($T < L_m$).*

Fall 6: DGNAA mit thermischen Neutronen (online, T > L)

Im 6. Fall werden verzögerte Gamma-Quanten gemessen, die aus dem Zerfall der durch thermischen Neutroneneinfang gebildeten Aktivierungsprodukte entstanden sind. Die Messung der verzögerten Gamma-Quanten erfolgt getrennt von der Messung der prompten Gamma-Quanten, da in diesem Fall die Pulsperiode T größer als die Lebensdauer der thermischen Neutronen L in der Bestrahlungskammer eingestellt wird (siehe Abb. 4.10).

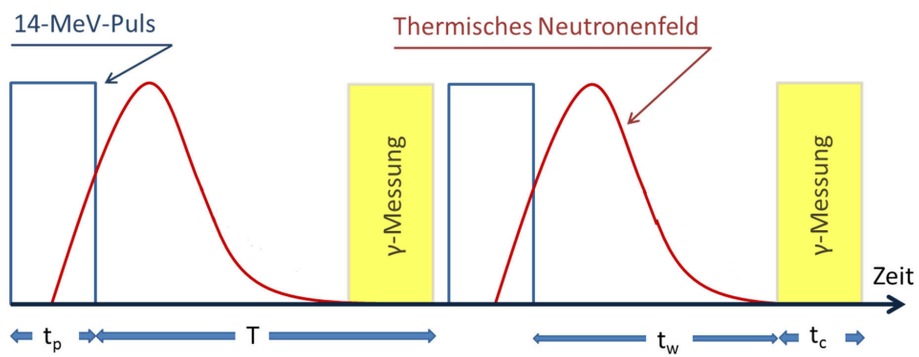


Abb. 4.10: Fall 6 – DGNAA mit thermischen Neutronen. *Datenakquisition nach der Wartezeit t_w, wobei die Pulsperiode T größer als die Lebensdauer der thermischen Neutronen innerhalb der Bestrahlungskammer L ist.*

Zur Bestimmung der Netto-Photopeakfläche gemäß Gl. 4.11 werden für die DGNAA mit thermischen Neutronen der Wirkungsquerschnitt für die Photonenproduktion $\sigma_{E_\gamma,th}$ und der mittlere Neutronenfluss Φ_{th} auf den thermischen Energiebereich des Neutronenspektrums angepasst. Hieraus folgt:

$$P_{6,E_\gamma} = \frac{m}{M} \cdot N_A \cdot \sigma_{E_\gamma,th} \cdot \varepsilon_{E_\gamma} \cdot \Phi_{th} \cdot f_{t,6} \tag{4.25}$$

Die Reihenentwicklung der kumulierten Ereignisse führt zu dem Zeitfaktor $f_{t,6}$, welcher im Fall der verzögerten Gamma-Neutronen-Aktivierung mit thermischen Neutronen von den Bestrahlungsparametern t_p, t_w, t_c, n, T ebenfalls von der Zerfallskonstante λ_t des Aktivierungsprodukts abhängig ist /4-2/:

$$f_{t,6} = \lambda_t^{-1}\left(1-e^{-\lambda_t t_p}\right)\cdot\left(e^{-\lambda_t t_w}\right)\cdot\left(1-e^{-\lambda_t t_c}\right)\cdot\left[\frac{n}{1-e^{-\lambda_t T}} - \frac{e^{-\lambda_t T}\cdot\left(1-e^{-n\lambda_t T}\right)}{\left(e^{-\lambda_t T}\right)^2}\right] \tag{4.26}$$

Die Elemente, die durch diesen Fall sensitiv nachgewiesen werden können, sind die gleichen wie im 5. Fall. Jedoch resultiert die Variation der Pulsperiode T auf einen längeren Zeitraum als die Lebensdauer der thermischen Neutronen L in einem geringen Untergrund für die Detektion der verzögerten Gamma-Quanten und somit zu einer gesteigerten Sensitivität.

Fall 7: DGNAA mit thermischen Neutronen (offline, $T < L_m$)

Im 7. Fall werden verzögerte Gamma-Quanten gemessen, die aus dem Zerfall der durch thermischen Neutroneneinfang gebildeten Aktivierungsprodukte entstanden sind. Die Messung der verzögerten Gamma-Quanten erfolgt am Ende der zyklischen Neutronenbestrahlung nach der Wartezeit t_w, wobei die Pulsperiode T kleiner als die mittlere Lebensdauer der thermischen Neutronen L_m in der Bestrahlungskammer eingestellt wird (siehe Abb. 4.11).

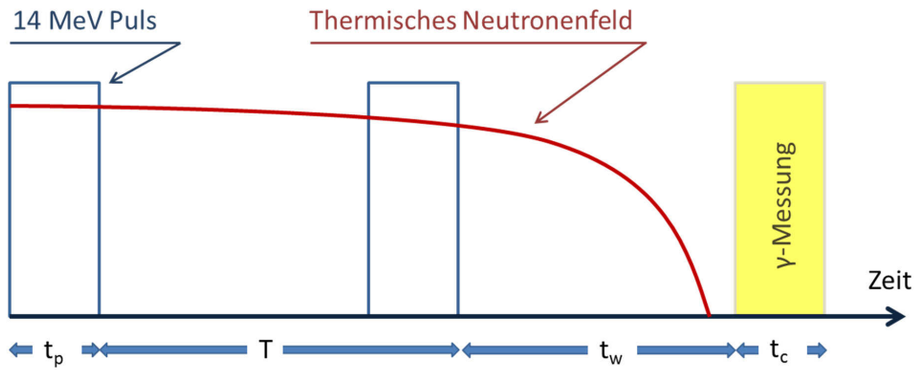


Abb. 4.11: Fall 7 – DGNAA mit thermischen Neutronen (offline, $T < L_m$). *Datenakquisition nach Ende der Neutronenbestrahlung und der Wartezeit t_w. Die Pulsperiode T ist kleiner als die Lebensdauer der thermischen Neutronen innerhalb der Bestrahlungskammer L.*

Zur Bestimmung der Netto-Photopeakfläche gemäß Gl. 4.11 werden für die DGNAA mit thermischen Neutronen der Wirkungsquerschnitt für die Photonenproduktion $\sigma_{E_\gamma,th}$ und der mittlere Neutronenfluss Φ_{th} auf den thermischen Energiebereich des Neutronenspektrums angepasst.

$$P_{7,E_\gamma} = \frac{m}{M} \cdot N_A \cdot \sigma_{E_\gamma,th} \cdot \varepsilon_{E_\gamma} \cdot \Phi_{th} \cdot f_{t,7} \tag{4.27}$$

Der Zeitfaktor $f_{t,7}$ ist im Fall der verzögerten Gamma-Neutronen-Aktivierung mit thermischen Neutronen von den variablen Bestrahlungsparametern t_p, t_w, t_c, n, T sowie von der Zerfallskonstante λ_t abhängig:

$$f_{t,7} = \left(1 - e^{-\lambda_t t_b}\right) \cdot e^{-\lambda t_w} \cdot \frac{\left(1 - e^{-\lambda_t t_c}\right)}{\lambda_t} \tag{4.28}$$

Fall 8: DGNAA mit thermischen Neutronen (offline, T > L)

Im 8. Fall werden verzögerte Gamma-Quanten gemessen, die aus dem Zerfall der durch thermischen Neutroneneinfang gebildeten Aktivierungsprodukte entstanden sind. Die Messung der verzögerten Gamma-Quanten erfolgt am Ende der Bestrahlung nach der Wartezeit t_w, wobei die Pulsperiode T größer als die Lebensdauer der thermischen Neutronen L in der Bestrahlungskammer eingestellt wird (siehe Abb. 4.12).

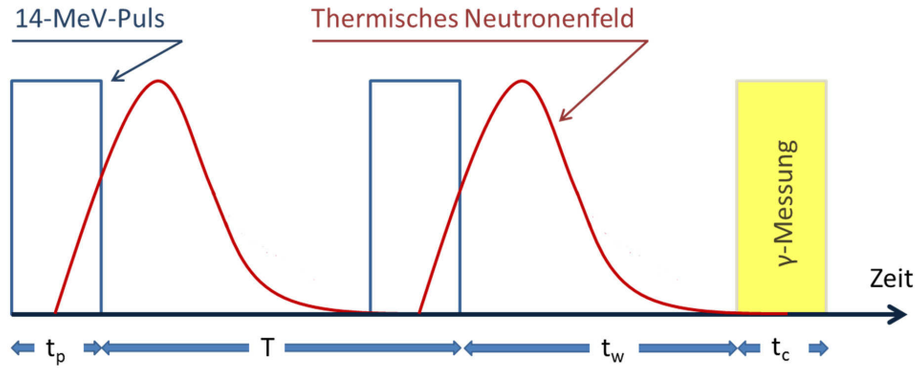


Abb. 4.12: Fall 8 – DGNAA mit thermischen Neutronen (offline, T < L). *Datenakquisition nach Ende der zyklischen Neutronenbestrahlung und der Wartezeit t_w. Die Pulsperiode T ist größer als die Lebensdauer der thermischen Neutronen innerhalb der Bestrahlungskammer L.*

Zur Bestimmung der Netto-Photopeakfläche gemäß Gl. 4.11 werden für die DGNAA mit thermischen Neutronen der Wirkungsquerschnitt für die Photonenproduktion $\sigma_{E_\gamma,th}$ und der mittlere Neutronenfluss Φ_{th} auf den thermischen Energiebereich des Neutronenspektrums angepasst. Hieraus folgt:

$$P_{8,E_\gamma} = \frac{m}{M} \cdot N_A \cdot \sigma_{E_\gamma,th} \cdot \varepsilon_{E_\gamma} \cdot \Phi_{th} \cdot f_{t,8} \tag{4.29}$$

Der Zeitfaktor $f_{t,8}$ ist im Fall der verzögerten Gamma-Neutronen-Aktivierung mit thermischen Neutronen von den variablen Bestrahlungsparametern t_p, t_w, t_c, n, T sowie von der Zerfallskonstante λ_t abhängig /4-2/:

$$f_{t,8} = \left(1 - e^{-\lambda_t t_b}\right) \cdot e^{\lambda(t_w - t_b)} \cdot \frac{\left(1 - e^{-n\lambda_t T}\right)}{\left(1 - e^{-\lambda T}\right)} \cdot \frac{\left(1 - e^{-\lambda_t t_c}\right)}{\lambda_t} \tag{4.30}$$

Bewertung

Die Anwendung dieser acht Bestrahlungs- und Akquisitionsmodi auf Grundlage unterschiedlicher Kernreaktionen und induzierter prompter bzw. verzögerter Gamma-Strahlung erlaubt eine verbesserte Elementidentifizierung und ist somit eine Stärke der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse. Einige Elemente liefern aufgrund ihres energieabhängigen Wirkungsquerschnitts für den Neutroneneinfang oder der spezifischen Halbwertszeit ihrer gebildeten Aktivierungsprodukte zwar nur auf einem Bestimmungsweg aussagekräftige Ergebnisse, doch eine speziell für ein Element bzw. Kernreaktion angewandte Optimierung der Bestrahlungsparameter erlaubt meist eine Identifizierung und Quantifizierung. Ist die Bestimmung einer Elementmasse über mehrere der aufgeführten Fälle möglich, so können die Ergebnisse aus den verschiedenen Aktivierungsprozessen und Akquisitionsmodi genutzt werden, um sich gegenseitig zu verifizieren. Die Tab. 4.6 und Tab. 4.7 listen ergänzend zu den acht Fällen die variablen und festen Bestrahlungsparameter der zyklischen NAA sowie deren Abhängigkeiten oder Einfluss auf das MEDINA-Messverfahren auf. Die festen Bestrahlungsparameter bei der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse werden neben dem eigentlichen Probenkörper von der Bestrahlungseinrichtung definiert. Im nachfolgenden Kapitel wird die MEDINA-Testeinrichtung als Bestrahlungseinrichtung zur Analyse von 200-l-Fässern beschrieben.

Tab. 4.6: *Feste Bestrahlungsparameter der zyklischen P&DGNAA beim MEDINA-Messverfahren.*

Feste Bestrahlungsparameter	Abhängigkeit des Bestrahlungsparameters	Einfluss des Bestrahlungsparameters
Messgeometrie & Probengröße	Dimension der Bestrahlungskammer durch Probengröße (Bauarttyp eines 200-l-Abfallfasses)	Effizienz bei der Detektion von Gamma-Strahlung, Moderations- und Lebensdauer der Neutronen
Matrixeigenschaften	Konditionierungsart der Abfälle (z. B. zementiert oder bituminierte Abfälle)	Moderations- und Lebensdauer der Neutronen sowie der Effizienz bei der Detektion von Gamma-Strahlung
Probenhomogenität	Konditionierung, Abfallart	Effizienz bei der Detektion von Gamma-Strahlung, Selbstabschirmungseffekte
Moderationszeit	Bestrahlungskammer und Probe (Materialzusammensetzung, Matrix-eigenschaften, Probenhomogenität)	Wartezeit
Neutronenenergie E_n	14-MeV-Startenergie durch Fusionsreation, zeitliche und örtliche Abhängigkeit	Wirkungsquerschnitt für einen partiellen Neutroneneinfang
Gamma-Energien des Compoundkerns bzw. Aktivierungsprodukts	Entstehung durch Kernreaktion mit Neutronen, charakterisiert durch Halbwertszeit, Wirkungsquerschnitt für Neutroneneinfang oder inelastische Streuung	Messung bzgl. Nachweisgrenzen und Interferenzen sowie Effizienz bei der Detektion von Gamma-Strahlung

Tab. 4.7: *Variable Bestrahlungsparameter der zyklischen P&DGNAA beim MEDINA-Messverfahren.*

Variable Bestrahlungsparameter	**Abhängigkeit des Bestrahlungsparameters**	**Einfluss des Bestrahlungsparameters**
Pulsperiode (T)	Aktivierungsprodukt und Matrixeigenschaften	Neutronenfluss innerhalb der Bestrahlungskammer
Pulslänge (t_p)	Aktivierungsprodukt und Matrixeigenschaften	Nachweisgrenzen & Gesamtmesszeit
Neutronenfluss Φ	Abhängig von Spannung und Stromstärke im Neutronengenerator	Nachweisgrenzen & Gesamtmesszeit
Wartezeit (t_w)	Abhängig von gesuchtem Aktivierungsprodukt, Matrix-eigenschaften sowie Möglichkeit zur Reduzierung von Interferenzen	Nachweisgrenzen & Gesamtmesszeit
Messzeit (t_c)	Abhängig von gesuchtem Aktivierungsprodukt und vorgegebener Pulsperiode sowie Wartezeit	Nachweisgrenzen & Gesamtmesszeit
Anzahl von Puls- und Messzyklen (n)	Abhängig von gesuchtem Aktivierungsprodukt, Matrixeigenschaften	Nachweisgrenzen & Gesamtmesszeit

Kapitel 5

MEDINA-Testeinrichtung

Zusammenfassung

In diesem Kapitel werden die einzelnen Systemkomponenten der MEDINA-Anlage beschrieben. Es werden die Anforderungen an die einzelnen Komponenten dargelegt und erläutert, welche Kriterien abschließend zu einer konkreten Wahl führten. Obwohl es sich bei MEDINA um eine Testeinrichtung handelt, wurden bei der Komponentenauswahl Kriterien berücksichtigt und gewichtet, wie sie auch bei einem späteren Routinemessverfahren von Relevanz wären. Die Funktionsweise, die Einstellmöglichkeiten sowie die Sicherheitsanforderungen des Neutronengenerators werden betrachtet. Die vom Neutronengenerator emittierten Neutronen werden in einer speziell für MEDINA konzipierten Bestrahlungskammer moderiert. Die Kammer besteht aus einem Moderatorwerkstoff sowie tragenden Strukturelementen wie einer einteilig abhebbaren Deckenkonstruktion. Die Bestrahlungskammer beinhaltet ferner einen Fassdrehteller, welcher rotationsabhängige Messungen von 200-l-Fässern oder Proben erlaubt. Der thermische Neutronenfluss im Bereich des Detektors führt zu einer Neutronen-Aktivierung des Germaniumkristalls, welche durch eine Neutronenabschirmung unterdrückt wird. Im Detektor absorbierte Photonen werden durch eine für hohe Zählraten angepasste Nuklearelektronik zu einem Spektrum verarbeitet.

5.1 Aufbauort und Systemkomponenten

Die MEDINA-Testeinrichtung wurde in einem Strahlungsbunker im Labor des Peter Grünberg Instituts (PGI) aufgebaut. Das Peter Grünberg Institut befindet sich auf dem Gelände der Forschungszentrum Jülich GmbH (FZJ Geb. 04.8). Die MEDINA-Bestrahlungskammer ist in einem gut abgeschirmten Targetraum aufgebaut. Dieser Raum wurde in den 70er und 80er Jahren als Targetraum für ein Kompaktzyklotron genutzt. Nach mehreren Jahren, in denen der Raum nicht genutzt wurde, wurde im Jahr 2010 dort die MEDINA-Anlage aufgebaut. An den Strahlungsbunker grenzt ein Kontrollraum, von dem die Testeinrichtung gesteuert wird (siehe Abb. 5.1). Die beiden Räume sind durch ein massives 2,2 m starkes Abschirmtor miteinander verbunden. Ein Sicherheitssystem erlaubt den Betrieb der Neutronenquelle nur, wenn ein Sicherheitsknopf innerhalb des Bestrahlungsbunkers gedrückt wird und das Abschirmtor vollständig geschlossen ist.

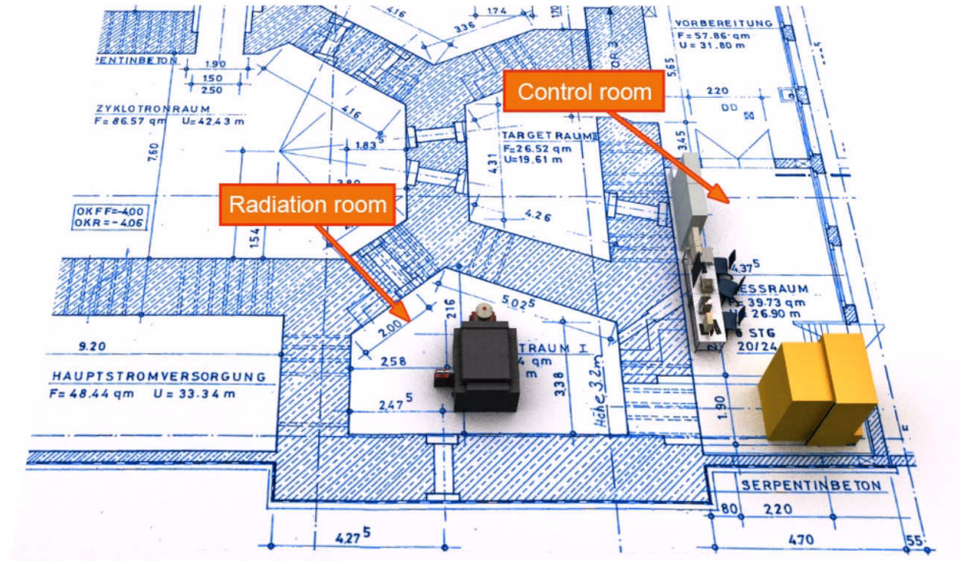


Abb. 5.1: *Lage von Bestrahlungskammer und Kontrollraum im Gebäude 04.8 des Peter Grünbergs Instituts (PGI) im Forschungszentrum Jülich (FZJ) /5-17/.*

Die MEDINA-Testeinrichtung besteht aus folgenden Komponenten: Moderatorwerkstoff und Trägermaterial der Bestrahlungskammer, Neutronenquelle mit zugehörigem Hochspannungs- und Steuerungsmodul, Fassdrehteller, Gamma-Spektrometer inkl. Hochspannungsversorgung und Detektorabschirmung (siehe Abb. 5.2). In den folgenden Unterkapiteln werden diese Komponenten sowie die hieraus abgeleiteten Standardbestrahlungs- und Messparameter inkl. der Einstellungen der Nuklearelektronik beschrieben.



Abb. 5.2: *MEDINA-Testeinrichtung zur stofflichen Charakterisierung von 200-l-Fässern.*

5.2 Die Neutronenquelle

Als Neutronenquelle kommt bei MEDINA der Neutronengenerator GENIE 16GT DT /5-1/ der Firma SODERN (Gruppe EADS), Frankreich, zum Einsatz. Der Neutronengenerator ist kommerziell erhältlich und erzeugt durch Fusionsreaktionen zwischen leichten Kernen (D-D; D-T) freie Neutronen. Freie Neutronen haben eine Lebensdauer von $881{,}5 \pm 1{,}5$ Sekunden, interagieren jedoch unmittelbar mit Materie und werden von Atomkernen eingefangen, bevor sie in ein Proton, ein Elektron und ein Antineutrino zerfallen würden.

Der Neutronengenerator besteht aus einem Neutronenemissionsmodul (Gas Insulated Neutron Emitting Module), einer Modulator-Einheit (Modulator Unit), einer Hochspannungsversorgung (Very-High-Voltage Power Supply) und einem Steuer- und Regelungsmodul. Das austauschbare Neutronenemissionsmodul ist ein geschlossenes Edelstahlrohr und beinhaltete einen Linearbeschleuniger. Es ist durch einen patentierten Verschluss an die Modulator-Einheit gekoppelt, an welcher die elektrischen Anschlüsse zur Steuerung und Stromversorgung angebracht sind (siehe Abb. 5.3).

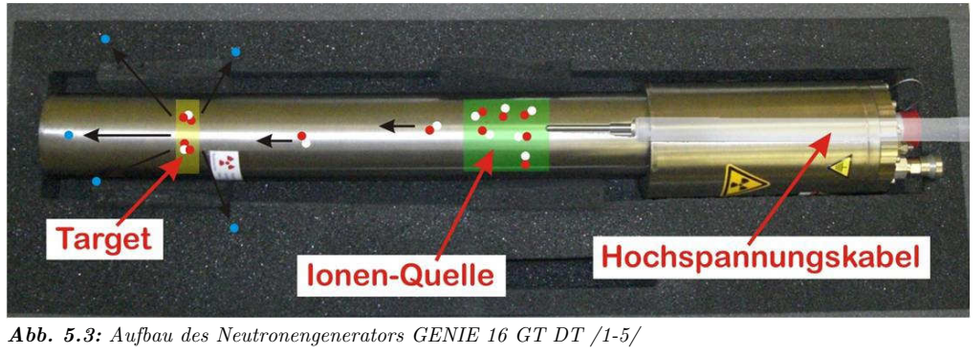


Abb. 5.3: *Aufbau des Neutronengenerators GENIE 16 GT DT /1-5/*

Das Neutronenemissionsmodul hat einen maximalen Durchmesser von 76 mm und eine Länge von 525 mm. Die Modulator-Einheit hat einen Durchmesser von 104 mm und eine Länge von 215 mm. Das Gewicht beider Komponenten beträgt ca. 8 kg.

Im Inneren des Neutronenemissionsmoduls befindet sich eine Ionenquelle, Beschleunigungs- und Fokussierlinsen, ein Target und ein Gasreservoir (siehe Abb. 5.4). In der Ionenquelle wird zunächst eine Gasmischung, die mit 50 % Deuterium und 50 % Tritium versetzt ist, ionisiert. Ionisierte Deuteronen ($^2H^+$) oder Tritonen ($^3H^+$) werden ausgehend von der Ionenquelle über ein elektrisches Feld mit einer angelegten Spannung von 70 kV bis zu 110 kV beschleunigt und auf ein Titan-Target geschossen.

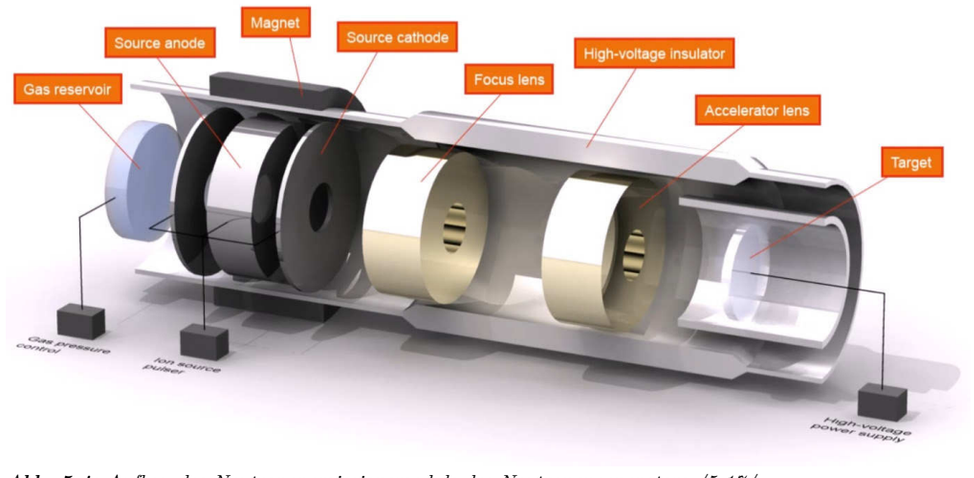


Abb. 5.4: *Aufbau des Neutronenemissionsmoduls des Neutronengenerators /5-17/.*

Das Target des Neutronenemissionsmoduls besteht aus einem metallischen Substrat (Grundplatte) auf die durch Vakuumverdampfen eine dünne Titan-Schicht abgeschieden wird. Diese Ablagerung wird mit den Nukliden Deuterium und Tritium imprägniert. Wasserstoff lässt sich durch den Einbau in Metallgitter mitunter auf kleineren Raum bringen als durch Kompression oder Verflüssigung und Titan eignet sich

besonders gut zum Speichern von Wasserstoff sowie dessen Isotopen Deuterium und Tritium. Das Titantarget ist mit einer Mischung von 50 % Deuterium und 50 % Tritium imprägniert. Während Deuterium stabil ist, ist Tritium ein β-Emitter und zerfällt mit einer Halbwertszeit von 12,3 Jahren. Die im Target gebundene Aktivität von Tritium beträgt bei dem verwendeten Neutronengenerator 120 GBq.

Das Neutronenemissionsmodul befindet sich in einer kreisrunden Aussparung innerhalb der Wandung der Bestrahlungskammer und ist orthogonal zur Detektorachse positioniert (siehe Abb. 5.5). Vertikal befindet es sich in einer Ebene mit der Mitte der zu untersuchenden Fässer. Das vordere Ende des Neutronenemissionsmoduls schließt mit der inneren Wand der Bestrahlungskammer ab. Da das Tritiumtarget ca. 15 cm vom vorderen Ende des Neutronenemissionsmoduls entfernt ist, unterliegen emittierte Neutronen auf dem Weg zu einem Probefass in Abhängigkeit ihrer Emissionsrichtung zum Teil einer Vormoderation durch den Graphit oder werden nahezu unmoderiert das Probenfass bestrahlen.

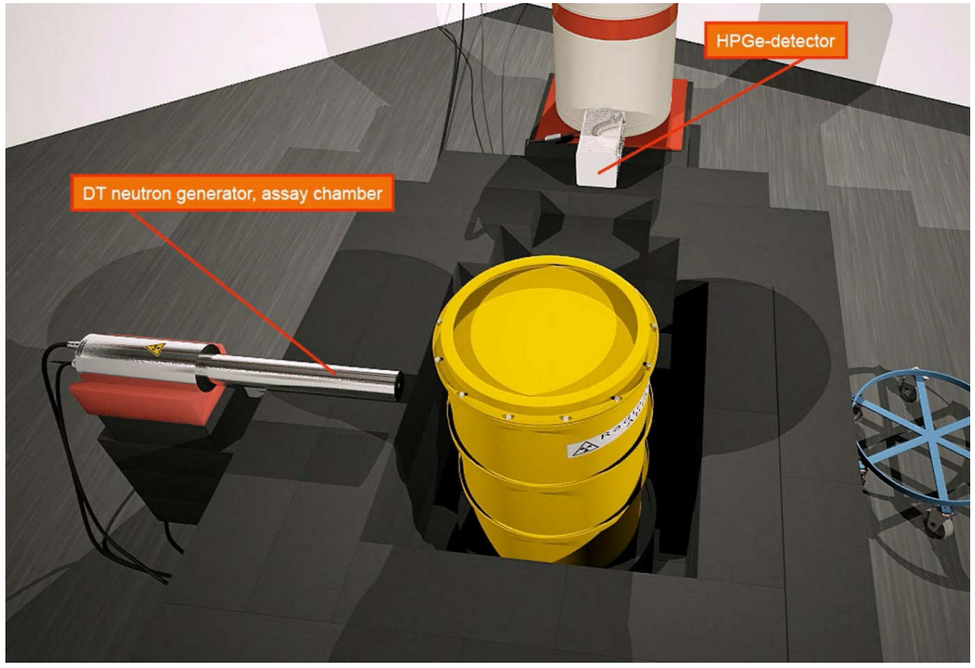


Abb. 5.5: *Positionierung von Neutronengenerator und HPGe-Detektor in der MEDINA-Bestrahlungskammer /5-17/.*

Gemäß Definition hat ein Deuteron durch die Beschleunigung mit einer Potentialdifferenz von 100 kV eine kinetische Energie von 100 keV. Die kinetische Energie der beschleunigten Kerne ist groß genug, um die Coulomb-Barriere anderer leichter Kerne zur durchdringen, sodass aufgrund der starken Wechselwirkung das Deuteron oder Triton mit leichten Kernen fusionieren kann. Ist das Target nach einer bestimmten Anzahl von Fusionsreaktionen verbraucht, kann das Neutronenemissionsmodul von der

Modulator-Einheit abgekoppelt und an den Hersteller für eine neue Targetbeladung zum Zweck der Wiederverwertung zurückgeschickt werden.

Bei den Fusionsreaktionen zwischen den beschleunigten Deuteronen bzw. Tritonen mit den Nukliden Deuterium und Tritium im Target entstehen freie Neutronen gemäß den folgenden Kernreaktionen:

$$^{2}H + {}^{3}H \rightarrow {}^{4}He + {}^{1}n + 17{,}586\ MeV \quad E_n = 14\ MeV\ ;\ \sigma_{bei\,100\,keV} = 3{,}43\ b \tag{5.1}$$

$$^{2}H + {}^{2}H \rightarrow {}^{3}He + {}^{1}n + 3{,}266\ MeV \quad E_n = 2{,}5\ MeV\ ;\ \sigma_{bei\,100\,keV} = 37\ mb \tag{5.2}$$

Die für die Fusion angelegten Beschleunigungsspannungen von über 80 kV sowie die Konzentrationen von Deuterium und Tritium im Target sind dafür verantwortlich, dass die erste Kernreaktion (Gl. 5.1) dominant ist und ca. 95 % der emittierten Neutronen eine Energie von ca. 14 MeV aufweisen. Daneben werden ca. 5 % der Neutronen mit einer Startenergie von 2,5 MeV emittiert (Gl. 5.2). Begründet ist dies dadurch, dass der Wirkungsquerschnitt der Fusionsreaktion ^{3}H(d,n)^{4}He bei 100 keV 3,43 b beträgt. Hingegen beträgt der Wirkungsquerschnitt für die Reaktion ^{2}H(d,n)^{3}He bei 100 keV nur 37 mb und ist demnach ca. 93 mal geringer. Eine weitere Fusionsreaktion, die beim Beschuss des Targets stattfindet, ist die Brutreaktion von Tritium:

$$^{2}H + {}^{2}H \rightarrow {}^{3}H + {}^{1}H\ ;\quad \sigma_{bei\,100\,keV} = 33\ mb \tag{5.3}$$

Bei dieser Reaktion werden zwar keine freien Neutronen emittiert, jedoch notwendiges und verbrauchtes Tritium für die Emission von 14 MeV-Neutronen erbrütet. Der Wirkungsquerschnitt dieser Brutreaktion ist mit 33 mb nahezu genauso groß wie die für die Emissionsreaktion für 2,5 MeV-Neutronen.

Zwecks Isolierung ist das Emissionsmodul (siehe Abb. 5.4) mit dem äußerst reaktionsträgen Gas Schwefelhexafluorid (SF_6) mit einem Druck zwischen 4 und 5 bar gefüllt /5-1/. Dieses Isoliergas wird innerhalb des Neutronenemissionsmoduls als Löschgas eingesetzt, um Schaltlichtbögen zu unterbrechen. Die Durchschlagfestigkeit ist bei Atmosphärendruck fast dreimal höher als in Luft oder in Stickstoff. Der SF_6-Gasdruck wird innerhalb des Neutronenemissionsmoduls als kritische Sicherheitsgröße überwacht und muss bei Unterschreitung eines Grenzwertes für den weiteren Betrieb nachgefüllt werden.

Zur Steuerung des Neutronengenerators werden die Regelgrößen Beschleunigungsspannung, Ionenstrom, Pulsfrequenz und Pulslänge genutzt. In Abhängigkeit der ersten beiden Regelgrößen ist eine Variation der Neutronenquellstärke möglich. Die maximale Neutronenquellstärke wird bei einer Beschleunigungsspannung von 90 kV und einem Ionenstrom von 40 µA erreicht und beträgt ca. $2 \cdot 10^{8}$ n/s. Diese Neutronen werden isotrop mit einer geringen Energieanisotropie freigesetzt. Bei den Beschleunigungsspannungen mit den GENIE 16GT DT operiert, werden bei relativistischer Betrachtung in Abhängigkeit vom Laborwinkel der Reaktionspartner Neutronen gemäß der Kernreaktion Gl. 5.1 mit einer Startenergie zwischen 13,41 MeV und 14,76 MeV emittiert /5-14/.

Die Pulsfrequenz kann zwischen 10 Hz und 10 kHz mit einer regelbaren Einschaltdauer zwischen minimal 5 % bis zum kontinuierlichen Betrieb eingestellt werden. Die Einschaltdauer ist das Verhältnis zwischen der Emissionszeit und der Gesamtzeit. Die Dauer zum Auf- bzw. Abbau eines Neutronenpulses ist stets geringer als 1,5 µs. Bei Einstellung einer Pulsfrequenz von 1 kHz und einer Pulslänge von 100 µs emittiert der Neutronengenerator bei einer Beschleunigungsspannung von 85 kV und einem Ionenstrom von 40 µA maximal isotrop $1 \cdot 10^8$ Neutronen pro Sekunde. Die Lebensdauer des Neutronenrohrs bei dieser Einstellung beträgt Minimum 4.000 Arbeitsstunden ohne Verlust der Neutronenquellstärke /5-1/. Diese Lebenszeit würde, die späteren Einstellungen zur Analyse eines 200-l-Fasses zu Grunde gelegt, ausreichen um ca. 900 Fässer zu analysieren.

Durch einen regelmäßigen Betrieb des Neutronengenerators, wie er in einem industriellen Routinemessverfahren stattfinden würde, werden die Bauteile des Neutronengenerators aktiviert. Aus diesem Grund ist zwar nach Abschalten des Generators keine Neutronendosisleistung, jedoch eine Gamma-Dosisleistung am Neutronenemissionsmodul messbar. Nach einem 70-stündigen kontinuierlichen Betrieb mit einer Neutronenemission von $3 \cdot 10^7$ n/s konnten folgende Aktivierungsprodukte identifiziert werden (siehe Tab. 5.1) /5-1/.

Tab. 5.1: *Entstehende Aktivierungsprodukte durch Aktivierung der Komponenten des Neutronengenerators /5-1/.*

Isotope	**^{27}Mg**	**^{56}Mn**	**^{24}Na**	**^{57}Ni**	**^{59}Fe**	**^{58}Co**	**^{57}Co**	**^{54}Mn**	**^{55}Fe**	**^{60}Co**
Halbwerts-zeit	9,5 min	2,58 h	14,96 h	35,9 h	44,5 j	70,8 j	270,9 j	312,2 j	2,68 a	5,27 a

Der durch die Aktivierung resultierende Gammadosisleistungsverlauf nach Abschalten des Neutronengenerators ist in Abb. 5.5 dargestellt. Innerhalb der ersten 24 Stunden nimmt die Gammadosisleistung am Neutronenemissionsmodul auf ca. 1/6 der Dosisleistung direkt nach dem Abschalten ab /5-1/. Bei Wartungsarbeiten sind zur Vermeidung einer unnötigen Strahlenexposition in Abhängigkeit von der vorigen Betriebsdauer und dem Zeitbedarf der Wartungsarbeiten entsprechende notwendige Abklingperioden zu berücksichtigen.

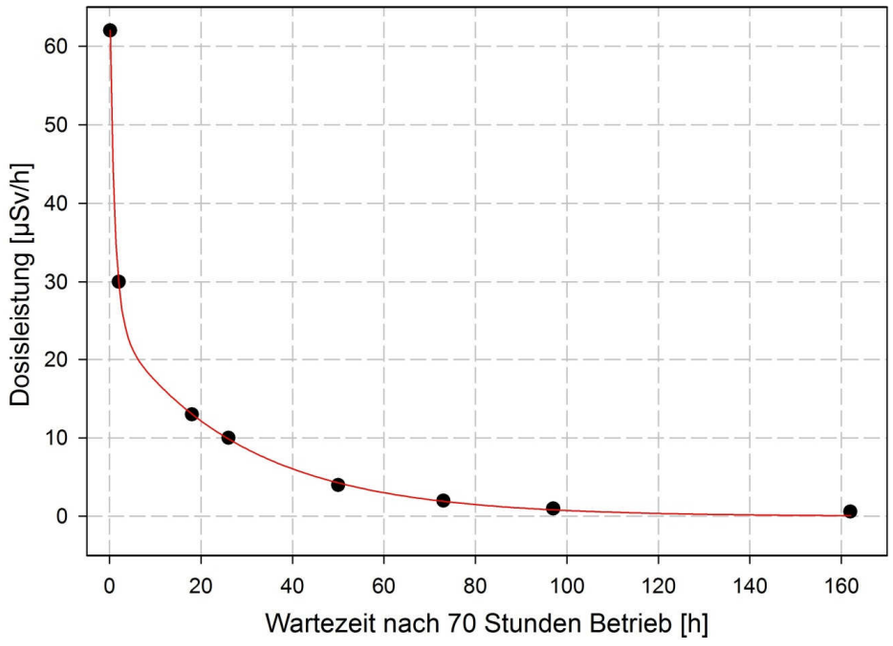


Abb. 5.6: *Kontaktdosisleistung am Neutronengenerator nach 70 Stunden kontinuierlichem Betrieb mit einer Neutronenemission von $3 \cdot 10^7$ n/s /5-1/.*

5.3 Bestrahlungskammer

Die primäre Anforderung an die Bestrahlungskammer innerhalb des MEDINA-Messverfahrens ist, ein zu untersuchendes 200-l-Fass mit einem möglichst geeigneten Neutronenmoderator und Neutronenreflektor zu umhüllen. Hierdurch werden die von dem Neutronengenerator emittierten hochenergetischen 14-MeV Neutronen auf ein thermisches Niveau moderiert. Die Neutronen befinden sich somit im energetischen Gleichgewicht mit dem umgebenden Medium. Das Medium, auf die die Neutronen über zahlreiche Stoßprozesse ihre Energie hauptsächlich übertragen, wird als Moderator bezeichnet.

Die Auswahl eines geeigneten Neutronenmoderators bzw. einer Moderatoranordnung ist für das MEDINA-Messverfahren entscheidend, da die Wahrscheinlichkeit einer Neutroneneinfangsreaktion für die meisten Elemente umso größer ist, je geringer die Neutronenenergie ist. Aktivierungen für analytische Zwecke lassen sich daher mit niederenergetischen Neutronen am wirksamsten durchführen. Die MEDINA-Messanordnung muss einem anfänglich existierenden schnellen Neutronenfeld einen wirksamen Moderator zur Verfügung stellen – wirksam in dem Sinne, dass ein guter Moderator schnelle Neutronen in wenigen Stößen abbremst und gleichzeitig die Neutronenverluste in der Anlage minimiert. Eine günstige Neutronenökonomie wird hierbei durch einen möglichst kleinen Absorptions- und einen großen Streuquerschnitt des Moderators sowie eine ausreichende Moderatormasse erreicht. Neben der Neutronenökonomie ist die erforderliche Zeit, bis die Neutronen thermalisiert sind, relevant (siehe

Kapitel 4.1). In dem Zeitfenster, in dem es durch die Moderation verstärkt zur inelastischen Streuung und daraus resultierenden Photonenemission kommt, ist in Abhängigkeit der Neutronenquellstärke die Anzahl der Photonen, die im Detektorkristall wechselwirken so hoch, dass die Totzeit des Spektrometers eine nicht annehmbare Größe annimmt. In diesem Zeitfenster ist eine auswertbare Datenakquisition durch die begrenzte Zeitauflösung des Halbleiterdetektors und der nachgeschalteten Nuklearelektronik nicht möglich. Wie in Kapitel 4.1 beschrieben, wurde aufgrund des erhöhten Untergrunds der prompten Gamma-Emissionen von wasserstoffhaltigen Moderatoren bei der MEDINA-Bestrahlungskammer Graphit als Moderatorwerkstoff selektiert und der Einsatz von wasserstoffhaltigen Materialien bei der Errichtung der Bestrahlungskammer wenn möglich vermieden.

Bevor die benötigte Graphitmasse und die Geometrie der MEDINA-Bestrahlungskammer bestimmt werden konnte, musste ein entsprechender zusammengepresster Graphitwerkstoff von einem Hersteller selektiert werden. Der Handel vom kerntechnikrelevanten Material, wie z. B. auch hochreinem Graphit, wird international streng kontrolliert. Graphit darf nur mit besonderen Auflagen exportiert werden, wenn dieser „nuklearrein“ ist. Unter Nukleargraphit versteht man Graphit mit einer Elementkonzentration von Bor oder Bor-Äquivalent (engl. Boron Equivalent: BE) von weniger als 5 ppm und einer Dichte von mehr als 1,5 g/cm^3 /5-7/. Das Bor-Äquivalent im Graphit kann durch eine Messung der totalen Neutronenabsorption /5-3/ oder der Definition nach über die Reinheitsbestimmung direkt ermittelt werden. Das Bor-Äquivalent in ppm ist ein Maß für die nuklearphysikalisch relevante Graphitverunreinigung. Darunter sind Verunreinigungen zu verstehen, welche zur Absorption thermischer Neutronen durch das Begleitmaterial innerhalb des Graphits führen. Das Bor-Äquivalent wird wie folgt definiert /5-6/:

$$BE = \sum_{i=1}^{n} \frac{\sigma_i}{\sigma_B} \frac{M_B}{M_i} w_i \tag{5.4}$$

Hierbei sind σ_B und σ_i die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte für die Absorption thermischer Neutronen von Bor in der natürlichen Isotopenhäufigkeit und des i-ten Elements. M_B und M_i sind die Molmassen von Bor sowie des i-ten Elements und w_i die Gewichtung des i-ten Elements (in ppm). Die Summe ist für alle Elemente außer Kohlenstoff durchzuführen.

Unter der Zielsetzung eines möglichst niedrigen aktiven Untergrunds, als auch aus neutronenökonomischer Sicht, ist Nukleargraphit mit einem möglichst geringen Bor-Äquivalent und einer hohen Dichte ein geeigneter Werkstoff zum Bau der Bestrahlungskammer. Folgende Graphitwerkstoffe wurden bzgl. ihrer Verunreinigungen analysiert und verglichen:

Typ A: Unbestrahlte Altbestände von Nukleargraphit für die Abschirmung des Hochtemperaturreaktors AVR Jülich (Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor Jülich),

Typ B: Konventioneller hochreiner Graphit der Firma Edelgraphit GmbH in Bonn, Typbezeichnung EG 1700,

Typ C: Nukleargraphit der französischen Firma SGL Carbon S.A.S, Typbezeichnung NBG 18 Grade for Nuclear Application,

Typ D: Nukleargraphit der französischen Firma SGL Carbon S.A.S, Typbezeichnung NBG 17 Grade for Nuclear Application.

Im Inventar der Forschungszentrum Jülich GmbH existierten mehrere Graphitblöcke von unbestrahlten Altbeständen des Nukleargraphits der Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor Jülich (AVR). Diese Art von Nukleargraphit wurde für Abschirmungen innerhalb des Hochtemperaturreaktors genutzt. Die vorhandenen Graphitblöcke hatten unterschiedliche Dimensionen. Informationen über Elementkonzentrationen als Verunreinigungen innerhalb des Graphits oder Herstellerinformationen waren nicht mehr vorhanden bzw. konnten nicht eindeutig zugeordnet werden. Da einzelne Graphitblöcke dieses Werkstoffs ggf. zur Probenplatzierung genutzt werden würden, wurde dieser Typ von Graphit mit in das Portfolio der zu untersuchenden Graphitwerkstoffe aufgenommen. Für den konventionellen Graphit, verkauft durch die Firma Edelgraphit in Bonn, sowie die Nukleargraphitsorten NBG 17 und NBG 18 der deutschen Firma SGL Carbon SE liegen Elementkonzentrationen der Hersteller vor /5-4/5-5/. In Tab. 5.2 sind die Begleitmaterialien als Verunreinigungen innerhalb der Graphitwerkstoffe vom Typ B, C und D aufgeführt.

Tab. 5.2: *Analysen der Begleitmaterialien der für den Bau der Bestrahlungskammer möglichen Graphitwerkstoffe. Als Analysemethode wurde bei Typ B die Röntgenfluoreszenzmethode und bei Typ C und Typ D die Neutronen-Aktivierungs-Analyse (P&DGNAA) angewandt. Die Abkürzung k. A. bedeutet keine Angaben bzgl. dieser Elementkonzentration vorliegend.*

Elemente	**Graphit Typ B Konzentration in [ppm]**	**Graphit Typ C Konzentration in [ppm]**	**Graphit Typ D Konzentration in [ppm]**
Aluminium (Al)	55	-	-
Barium (Ba)	10	-	-
Bor (B)	k. A.	0,9	0,79
Cadmium (Cd)	k. A.	$< 0{,}06$	$< 0{,}0041$
Calcium (Ca)	150	-	-
Chlor (Cl)	k. A.	< 10	< 5
Eisen (Fe)	140	15	7,5
Gadolinium (Gd)	k. A.	$< 0{,}03$	0,021
Magnesium (Mg)	50	-	-
Molybdän (Mb)	k. A.	0,15	$< 0{,}24$
Nickel (Ni)	50	1,8	2,7
Vanadium (V)	k. A.	1,8	4,7
Samarium (Sm)	k. A.	$< 0{,}02$	0,015
Schwefel (S)	340	-	-
Silicium (Si)	400	-	-
Strontium (Sr)	10	-	-

Als Analysemethode wurde bei Edelgraphit (Typ B) die Röntgenfluoreszenzmethode angewandt. Die Konzentrationen der Verunreinigungen der Graphitwerkstoffe der Firma SGL Carbon SE sind durch Neutronen-Aktivierungs-Analysen bestimmt worden. Genaue Informationen über die Messbedingungen hierbei oder die Nachweisgrenzen des Messverfahrens liegen nicht vor.

Zwecks Untersuchung der Graphitbestände aus dem AVR und der Validierung der Herstellerangaben von den Firma Edelgraphit GmbH und SGL Carbon wurden jeweils drei Graphitproben mit Massen zwischen einem und zwei Gramm zum „Centre for Energy Research der Hungarian Academy of Sciences“, Budapest, geschickt und dort analysiert /5-9/. Die Tab. 5.3 vergleicht die durch P&DGNAA ermittelten Elementkonzentrationen für die verschiedenen Graphitproben. Die Messungen, auf denen Tab. 5.3 basiert, erfolgten am Forschungsreaktor Budapest, wobei die Proben im Unterdruck mit einem Neutronenfluss von $9 \cdot 10^7$ $cm^{-2}s^{-1}$ bestrahlt wurden. Die genaue Spezifikation der PGNAA-Bestrahlungs- und Messanlage sowie die Nachweisgrenzen des Messverfahrens zur Bestimmung der Elementkonzentrationen sind der Veröffentlichung „Upgrade oft the Prompt Gamma Activation Analysis and Neutron-Induced Prompt Gamma Spectroscopy Facilities at the Budapest Research Reactor“ zu entnehmen /5-10/.

Tab. 5.3: *Vergleich der Begleitmaterialien der für den Bau der Bestrahlungskammer analysierten Graphitwerkstoffe. Elementkonzentrationen wurden durch eine Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungsanalyse (PGNAA) am Forschungsreaktor in Budapest ermittelt.*

Elemente	**Konz. Typ A**	**Uns. [%]**	**Konz. Typ B**	**Uns. [%]**	**Konz. Typ C**	**Uns. [%]**	**Konz. Typ D**	**Uns. [%]**
Wasserstoff (H)	50 ppm	3,5	45 ppm	3,6	34 ppm	3,5	39 ppm	3,4
Bor (B)	0,25 ppm	3,1	1,86 ppm	3,1	0,458 ppm	3,1	0,563 ppm	3,1
Kohlenstoff (C)	99,805 %	0,004	99,913 %	0,004	99,939 %	0,004	99,932 %	0,004
Aluminium (Al)	1188 ppm	8	405 ppm	7	380 ppm	7	450 ppm	7
Silicium (Si)	85 ppm	11			60 ppm	25	90 ppm	18
Schwefel (S)	36 ppm	13	115 ppm	7	50 ppm	17		
Chlor (Cl)	2 ppm	12	2 ppm	74				
Kalium (K)					5 ppm	37		
Calcium (Ca)	24 ppm	10	195 ppm	6			22 ppm	16
Titan (Ti)	6,7 ppm	6	41,5 ppm	5	7,8 ppm	6	8,1 ppm	4
Vanadium (V)	3 ppm	11	3,5 ppm	25	-		3,9 ppm	11
Eisen (Fe)	142 ppm	34	50 ppm	21	40 ppm	18	40 ppm	19
Samarium (Sm)	0,008 ppm	7	0,073 ppm	5	0,014 ppm	5	0,036 ppm	5
Gadolinium (Gd)	0,0137 ppm	6	0,2215 ppm	6			0,033 ppm	6
Dysprosium (Dy)					0,9 ppm	9		

Das Bor-Äquivalent der vier Graphitwerkstoffe kann direkt über die Reinheitsbestimmung ermittelt werden. Selbst geringe Verunreinigungen mit Elementen, die einen großen Wirkungsquerschnitt für einen thermischen Neutroneneinfang aufweisen, wie z. B. das Element Gadolinium, erhöhen das Bor-Äquivalent deutlich.

Das Bor-Äquivalent einer jeweiligen Verunreinigung im Graphit sowie die Summe der Bor-Äquivalente der vier Graphitwerkstoffe sind in Tab. 5.4 aufgelistet. Aus den Daten von Tab. 5.4 ist ersichtlich, dass Nukleargraphit mit einem Bor-Äquivalent zwischen 0,8 ppm und 1 ppm besser geeignet ist als der als nicht-nuklearer Graphit spezifizierte mit einem Bor-Äquivalent von 3,2 ppm. Ebenfalls spricht die höhere Dichte für die Anwendung von Nukleargraphit. Bzgl. Dichte und Bor-Äquivalent wäre der Nukleargraphit der Firma SGL Carbon mit der Typbezeichnung NBG 18 und einer Dichte von 1,85 g/cm^3 für den Bau der MEDINA-Bestrahlungskammer am geeignetsten.

Tab. 5.4: *Bor-Äquivalent und Dichte der vier Graphitwerkstoffe. Bor-Äquivalent bestimmt aus den Elementkonzentrationen der Verunreinigungen.*

Elemente	**Mol-masse [g/mol]**	$\sigma_{ab,th}$ **[barn]**	**Typ A** *AVR-Nukleargraphit* **Bor-Äquivalent [ppm]**	**Typ B** *Edelgraphit Bez. EG 1700* **Bor-Äquivalent [ppm]**	**Typ C** *SGL CARBON Bez. NBG 18* **Bor-Äquivalent [ppm]**	**Typ D** *SGL CARBON Bez. NBG 17* **Bor-Äquivalent [ppm]**
Wasserstoff (H)	1.008	0,3326	0.23	0.21	0.16	0.18
Bor (B)	10,81	764	0.25	1.86	0.46	0.56
Kohlenstoff (C)	12,01	0,00351				
Aluminium (Al)	26,98	0,231	0.14	0.05	0.05	0.05
Silicium (Si)	28,09	0,172	0.01		0.01	0.01
Schwefel (S)	32,07	0,532	0.01	0.03	0.01	
Chlor (Cl)	35,45	33,1	0.03	0.03		
Kalium (K)	39,1	2,06			0.00	
Calcium (Ca)	40,08	0,431	0.00	0.03	0.00	0.00
Titan (Ti)	47,87	6,08	0.01		0.01	0.01
Vanadium (V)	50,94	4,96	0.00			0.01
Eisen (Fe)	55,85	2,56	0.09	0.03	0.03	0.03
Samarium (Sm)	150,4	5621	0.004	0.04	0.01	0.02
Gadolinium (Gd)	157,3	48770	0.06	0.97	0.00	0.14
Dysprosium (Dy)	162,5	944			0.07	
Summe Bor-Äquivalent:			**0,8**	**3,2**	**0,8**	**1,0**
Dichte [g/cm^3]			**1,87**	**1,72**	**1,85**	**1,84**

Aufgrund des signifikant höheren Preises für Nukleargraphit, welcher 6 bis 10 mal höher ist als konventionelle Produkte, wurde hinsichtlich einer Kostenreduzierung jedoch kein Nukleargraphit zum Bau der Bestrahlungskammer verwendet. Der Vorteil bei einer Validierung des Messverfahrens mit

konventionellem Graphit ist, dass so ggf. die Möglichkeit besteht, mit der Technik internationale Märkte zu erschließen, ohne beim Export des Graphitwerkstoffs restriktive Transportbeschränkungen für Nukleargraphit zu berücksichtigen. Zum Bau der MEDINA-Bestrahlungskammer wurde konventioneller Graphit bei der Firma Edelgraphit GmbH mit der Typbezeichnung EG 1700 bestellt. Der Graphit weist eine Dichte von 1,72 g/cm^3 auf.

Die Konzipierung der Bestrahlungskammer anhand der notwendigen Abmessungen zur Umschließung eines 200-l-Fasses sowie nuklearphysikalische Simulationen (siehe Kapitel 5.10) ergeben, dass ca. 6.500 kg Graphit für den Bau der Bestrahlungskammer notwendig sind.

Die Bestrahlungskammer ist aus einzelnen Graphitblöcken aufgebaut, welche eine Masse von bis zu 48 kg haben. Der Preis für 6.500 kg extrudierten Graphit, zurechtgesägt in maßhaltige Graphitblöcke, betrug ca. 50.000 €. Die Bestrahlungskammer hat eine Länge von 200 cm (mit Detektor 260 cm), eine Breite von 160 cm und eine Höhe von 155 cm inkl. Decke (siehe Abb. 5.7). Die längliche Abmessung der Bestrahlungskammer ergibt sich aus dem Umstand, dass der Detektor in genügendem Abstand zu den Fässern positioniert werden muss, damit dieser integral das gesamt Fass erfassen kann. Die Bauhöhe eines Referenzfasses definiert den Abstand von 105 cm vom Fassmittelpunkt bis zum Anfang des Detektorkristalls.

Die Deckenkonstruktion der Bestrahlungskammer besteht aus kohlefaserverstärktem Kunststoff (CFK) und trägt eine 30 cm starke Graphitschicht. Sie kann per Kran mit vier Lastanschlagpunkten von der Kammer abgehoben werden. Die seitlichen Wandungen der Bestrahlungskammer sind 40 cm stark. Im Inneren der Bestrahlungskammer ist mit einer Kantenlänge von 80 cm mal 80 cm und einer lichten Höhe von 120 cm genug Raum, um auf den im Inneren befindlichen Fassdrehteller jedes handelsübliche 200-l-Fass zu platzieren.

Das Zwickelvolumen um den Fassdrehteller herum wurde ebenfalls mit Graphit in variabler Stärke (10 cm – 20 cm) abgeschirmt (siehe Abb. 5.7 linkes Bild). Eine einheitliche Abschirmung von z. B. 30 cm Graphit im Boden war aufgrund der Bauhöhe des Raums nicht möglich.

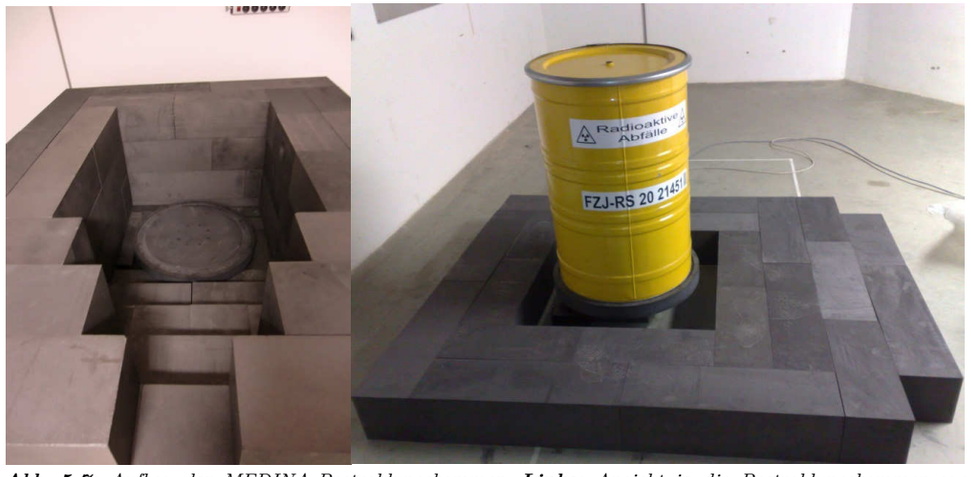


Abb. 5.7: *Aufbau der MEDINA-Bestrahlungskammer.* ***Links:*** *Ansicht in die Bestrahlungskammer aus dem Blickwinkel des HPGe-Detektors. Die ersten drei Ebenen sind aufgebaut und man erkennt die Aussparungen innerhalb der Bestrahlungskammer, die dazu dienen, dass der Detektor integral das gesamte Fass erfassen kann.* ***Rechts:*** *Die erste Ebene der Bestrahlungskammer ist aufgebaut und der Fassdrehteller auf dem Betonboden verschraubt. Zwischen Fassdrehteller und den Wandungen der Bestrahlungskammer befindet sich hier noch kein Graphit (siehe links).*

5.4 Trägermaterial der Bestrahlungskammer

Das Verbringen eines 200-l-Fasses in die Bestrahlungskammer und ihr Verschluss durch die Decke sollten möglichst schnell, sicher und stets unter der Prämisse der Reduzierung der Strahlenexposition von Betriebspersonal geschehen. Die geschlossene Bestrahlungskammer sollte möglichst keine Spalten oder Öffnungen aufweisen um eine Neutronenleckage zu vermindern. Aus diesem Grund wurde eine einteilig abnehmbare Deckenkonstruktion gewählt. Die Vorteile einer einteiligen Deckenkonstruktion sind das Fehlen von unüberlagerten Stößen zur Minimierung von Neutronenverlusten, sowie der geringere Zeitbedarf für das Öffnen und Schließen der Kammer im Vergleich zu einer mehrteiligen Deckenkonstruktion (siehe Abb. 5.9). Die Auflagefläche der Decke wurde mit einer allseitigen Überdeckung von 20 cm dimensioniert. In Anbetracht der zu bewegenden Masse einer einteiligen Decke von ca. 1.000 kg ist eine selbsttragende abnehmbare Dachkonstruktion nur aus Graphit nicht möglich. Metallisches Strukturmaterial für die Deckenkonstruktion ist, genau wie Strukturmaterial mit einem hohen Wasserstoffanteil, aufgrund der Erhöhung des aktiven Untergrunds der Messung nachteilig für das MEDINA-Messverfahren.

Somit wurde die Herstellung von tragenden Strukturkomponenten aus Kohlefasern und Epoxidharz gewählt. Kohlefaserverstärkter Kunststoff (CFK) ist ein Verbundwerkstoff mit einem hohen Verhältnis von Festigkeit zu Masse. Für die Untersuchung der Elementgehalte des kohlefaserverstärkten Kunststoffs wurden drei Proben mit Massen zwischen einem und drei Gramm zum „Centre for Energy Research der Hungarian Academy of Sciences“, Budapest geschickt und dort analysiert /5-9/. Die Messungen, auf

denen die Analyse der Elementkonzentrationen im CFK basieren, geschahen unter den gleichen Messbedingungen wie die Analyse der Graphitwerkstoffe (siehe Seite 109 und /5-10/). Die Ergebnisse der Elementaranalyse der CFK-Proben durch die PGNAA am Energy Research der Hungarian Academy of Sciences sind in Tab. 5.5 gezeigt. Der Werkstoff besteht in seiner elementaren Zusammensetzung aus Kohlenstoff, Stickstoff, Wasserstoff, Chlor und Spuren von Bor. Besonders bei einem möglichst hohen Faservolumenanteil erreicht man einen hohen Anteil von Kohlenstoff. Die CFK-Komponenten, hergestellt für die Bestrahlungskammer, enthalten zu 92 Ma-% Kohlenstoff /5-9/ und sind somit ein innovativer Werkstoff für tragendende Strukturkomponenten einer PGNAA-Messeinrichtung für großvolumige Proben. In anderen PGNAA-Messsystemen wurde CFK mit möglichst hohem Faservolumenanteil bis dato nicht erprobt. Nachteilig sind der Elementgehalt von Bor, Chlor und Wasserstoff im Werkstoff. Diese Elemente weisen einen großen Absorptionsquerschnitt für thermische Neutronen mit anschließender Prompt-Gamma-Emission auf.

Tab. 5.5: *Elementarzusammensetzung des für das MEDINA-Messverfahren benutzten kohlefaserverstärkten Kunststoffs (CFK) als tragendes Strukturmaterial /5-9/.*

Elemente	**Konzentration [Ma-%]**	**relative Unsicherheit [%]**
Wasserstoff (H)	2,9	2,9
Bor (B)	1,37 ppm	3,5
Kohlenstoff (C)	92	0,3
Stickstoff (N)	4,9	4,3
Chlor (Cl)	0,2	14

Die Decke der MEDINA-Bestrahlungskammer besteht aus einer 2 cm starken CFK-Platte mit einer Länge von 143 cm und einer Breite von 133 cm und ist in Abb. 5.8 dargestellt. Auf der CFK-Platte wurde eine 350 mm hohe Rahmenkonstruktion als Verrutschschutz in eine gefräste Nut geklebt.

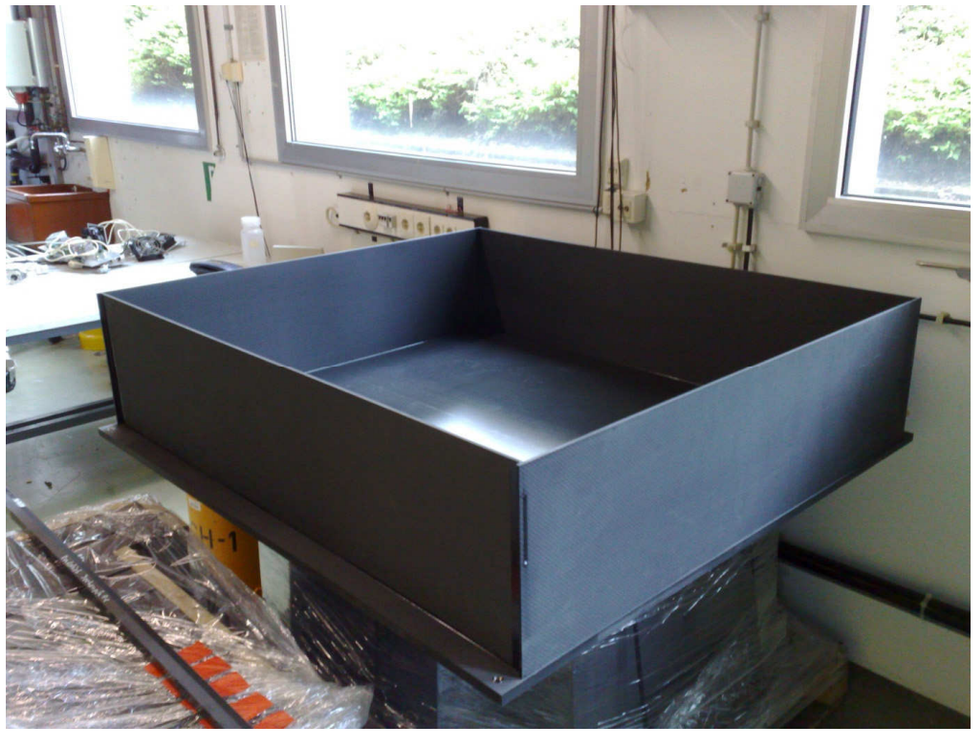


Abb. 5.8: *Deckenkonstruktion aus CFK zur Aufnahme von 1000 kg Graphit gehalten durch einen 35 cm hohen Verrutschschutz. Die einzigen metallischen Bauteile an der Deckenkonstruktion sind Anschlagmittel für Hebezeuge (auf dem Bild noch nicht montiert) und deren Halter in der CFK-Platte.*

Innerhalb des Verrutschschutzes befinden sich Graphitblöcke mit einer Höhe von 30 cm. Bei abgenommener Decke kann ein 200-l-Fass per Kran neben der Graphitmesskammer aufgenommen, auf die Position über dem Fassdrehteller bewegt und dann vertikal in die Messkammer abgelassen werden. Die Beladung eines Fasses dauert etwa 10 Minuten. Neben der Deckenkonstruktion wurden zwei weitere Komponenten für die Bestrahlungskammer aus CFK gefertigt: ein tragender Balken zur Lastaufnahme und der Fassdrehteller, auf dem ein 200-l-Fass positioniert wird.



Abb. 5.9: *Abgenommene Deckenkonstruktion der MEDINA-Testeinrichtung für den Wechsel eines Probenfasses.*

5.5 Fassdrehteller

Zur Bestimmung der Inhomogenitäten im 200-l-Fass ist eine diskrete Rotation vorgesehen. Im Standardfall werden zur Analyse eines 200-l-Fasses acht Messungen bei diskreten Winkelstellungen, die sich jeweils um 45° Grad unterscheiden, am ruhenden Fass durchgeführt. Optional könnten auch Messungen während einer kontinuierlichen Rotation ausgeführt werden. In der MEDINA-Testeinrichtung ist zur Erfüllung dieser Anforderungen ein Fassdrehteller verbaut, welcher über eine extern aus dem Kontrollraum bedienbare Steuerung verschiedene Winkelstellungen anfahren kann. Die beim MEDINA-Messverfahren zur Anwendung kommende Variante der Messung eines Fasses über diskrete Rotationsschritte ermöglicht es, radiale Inhomogenität in der Elementverteilung eines 200-l-Fasses zu untersuchen. Bei einer Messung mit einer kontinuierlichen Rotation ist dies nicht möglich, wodurch bei einer inhomogenen Abfallmatrix nicht die Annährung des Quellterms der Gamma-Emission möglich ist.

Aufgrund der Materialanforderungen konnte für die MEDINA-Testeinrichtung kein kommerziell verfügbarer Fassdrehteller genutzt werden. Grundlage der Drehtellermechanik ist ein mit der Firma Fibro GmbH ausgewählter und angepasster Rundschalttisch (siehe Abb. 5.10). Dieser Rundschalttisch erfüllt die gestellten Spezifikationen, wie eine zulässige horizontale Transportlast von 1000 kg, sowie eine autarke externe Steuerbarkeit. Er zeichnet sich durch eine geringe Eigenmasse und eine kompakte Bauform aus.

Die kompakte Bauform ermöglicht es, den Rundschalttisch besser vom Neutronenfeld abzuschirmen. Genau wie die geringe Eigenmasse des Rundschalttischs führt dies zu einer niedrigeren Aktivierung und reduziert somit den aktiven Untergrund für die gammaspektrometrischen Messungen.

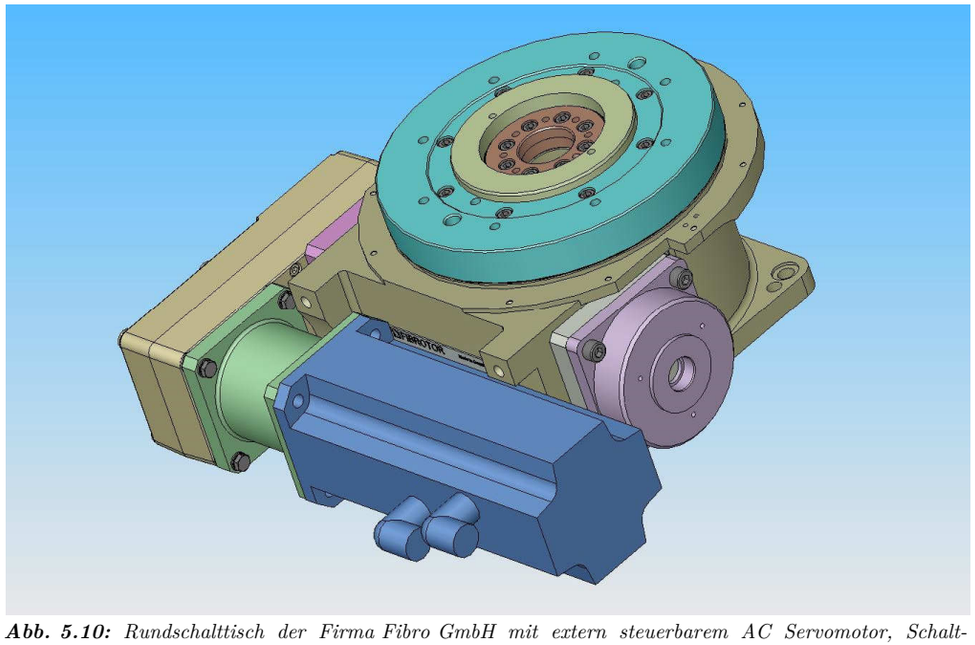


Abb. 5.10: *Rundschalttisch der Firma Fibro GmbH mit extern steuerbarem AC Servomotor, Schalttellerdurchmesser 220 mm, zulässige horizontale Transportlast 1000 kg /Fibro GmbH/.*

Die Aufnahme des Messguts übernimmt gemäß der Produktpalette der Fibro GmbH normalerweise ein auf dem Rundschaltteller verbauter Zusatzschaltteller aus Stahl oder Aluminium mit einem für das Messgut angepassten Durchmesser. Aluminium ist aufgrund seiner guten Aktivierbarkeit im Neutronenfeld keine gute Option. Da die Eisenmasse des 200-l-Stahlfasses als Monitor für den Neutronenfluss verwandt wird und die Taramasse eines Stahlfasses eine ähnliche Eisenmasse aufweist wie die zusätzliche Eisenmasse eines Zusatzschalttellers aus Stahl (ca. 50 kg), ist dieser Werkstoff ebenfalls nicht akzeptabel. Angepasst an den Schaltteller des Rundschalttisches wurde ein Zusatzschaltteller aus kohlenstofffaserverstärktem Kunststoff (CFK) gefertigt. Dieser Faser-Kunststoff-Verbundwerkstoff wurde schon als Struktur- und Stützmaterial beim Bau der Bestrahlungskammer verwendet. Der CFK-Zusatzschaltteller (siehe Abb. 5.11 links) hat einen Durchmesser von 64 cm, eine Dicke von 6 cm und ein Gewicht von 28 kg. Die Dicke des CFK-Zusatzschalttellers wurde so dimensioniert, dass hierdurch der Rundschalttisch vor dem Neutronenfluss hinreichend abgeschirmt ist. Durch die Konzeptionierung dieses Fassdrehtellers, bestehend aus Rundschalttisch und CFK-Zusatzschaltteller, kann der aktive Untergrund während der Messung im Vergleich zu bestehenden Fassdrehtellersystemen reduziert werden.



Abb. 5.11 Links: *Rundschalttisch der Firma Fibro GmbH mit Zusatzschaltteller aus CFK (Durchmesser 64 cm).* ***Rechts:*** *Vergleich zwischen einem Standardrundschalttisch mit metallischem Fassdrehteller und einer Masse von 90 kg und dem bei MEDINA verwandten Kompaktsystem mit den äußeren Abmessungen 43 cm · 42 cm · 15 cm und einer Masse von 28 kg.*

5.6 Gamma-Spektrometer

Die Messung der durch Neutronen induzierten prompten und verzögerten Gamma-Strahlung erfolgt mit einem hochauflösenden gammaspektrometrischen Messsystem. Die detektierten Photonen können aus einer Neutronen-Aktivierung des innerhalb der Bestrahlungskammer platzierten Messobjektes oder der Bestrahlungskammer selbst resultieren. Das gammaspektrometrische System besteht aus einem hochreinen Germaniumdetektor (engl.: High Purity Germanium Detector, HPGe-Detector) mit integriertem Vorverstärker, einem Verstärker, einem Gate Delay Generator, einem digitalen Vielkanalanalysator und einem PC mit der Spektrenaufnahmesoftware GammaVision V.6.01 (siehe Abb. 5.12).

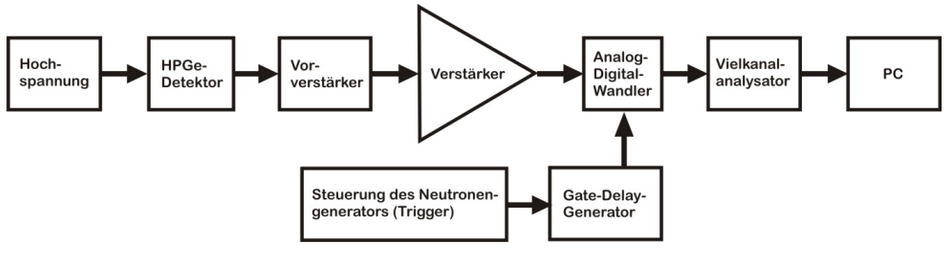


Abb. 5.12: *Schematische Darstellung der Prozesskette des Gamma-Spektrometers /1-5/.*

Das Gamma-Spektrum gibt in Abhängigkeit zur Energie die Anzahl der gemessenen Ereignisse im Detektor wieder und ist Grundlage für alle weiteren qualitativen und quantitativen Analysen. Als Detektor wird bei der MEDINA-Anlage ein hochauflösender koaxialer Germanium-Detektor der Firma Canberra verwandt. Der Halbleiterdetektor besteht aus einem hochreinen Germaniumkristall mit einer relativen Effizienz von 100 %. Der zylinderförmige Kristall mit einer inneren Aussparung für den Kühlfinger hat einen Außendurchmesser von 80 mm und eine Länge von 80 mm. Der Detektor ist auf der mittleren Fassebene des Referenzfasses mit einem Abstand von 105 cm zum Fassmittelpunkt in der Wand

der Bestrahlungskammer senkrecht zum Neutronengenerator positioniert. Dieser Abstand ist ausreichend, um übliche 200-l-Fässer vollständig integral zu erfassen (siehe Abb. 5.13).

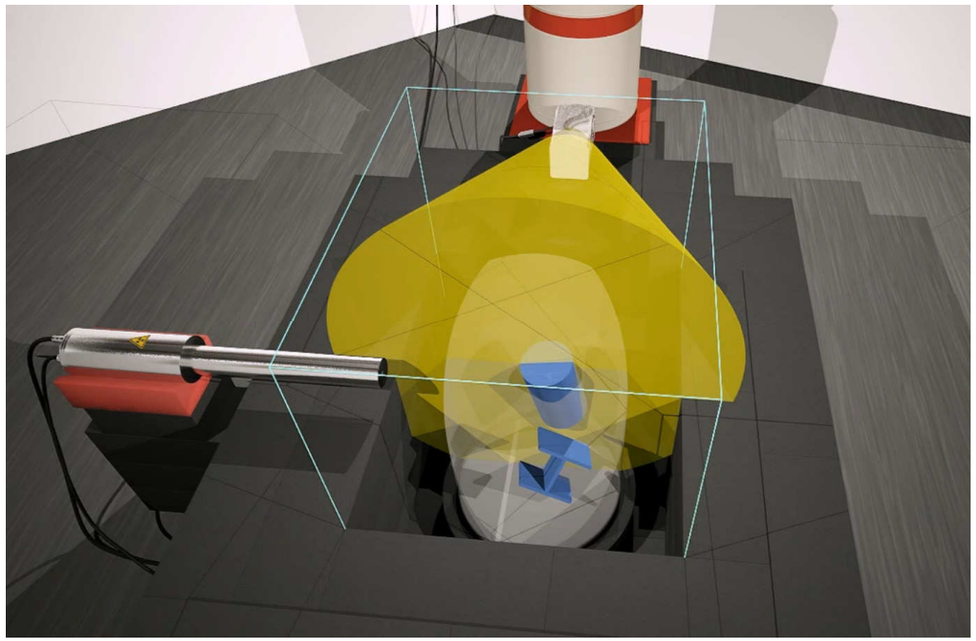


Abb. 5.13: *Detektorpositionierung zur integralen Erfassung von 200-l-Fässern /5-17/.*

Die aus dem Messobjekt oder von der Bestrahlungskammer ausgesandte ionisierende Strahlung verursacht beim Durchgang durch den Halbleiterdetektor Elektronen-Lochpaare, die anschließend in einem elektronischen Feld gesammelt werden. Dieses elektrische Feld wird durch die am Detektor anliegende Hochspannung von -5 kV aufrechterhalten. Die Hochspannungsversorgung des Detektors erfolgt durch das Modul Modell 3106D der Firma Canberra. Bei einem großen Kristallvolumen ist der Vorverstärker entscheidend für die Messung hoher Aktivitäten. Im Kristall wird, wie zuvor beschrieben, ein entsprechend hoher Ladungsstrom erzeugt. Der Vorverstärker muss diese Ladungsmenge in einem möglichst kurzen Zeitraum verarbeiten können. Der im Detektorgehäuse integrierte Vorverstärker der Fa. Canberra vom Typ 2101N (Transistor-Reset-Preamplifier) speichert die Ladung im Halbleiterdetektor auf einen Kondensator und liefert am Ausgang einen zur Ladung proportionalen Spannungsimpuls. Der verbaute Transistor-Reset-Vorverstärker ist speziell für die Messung von hohen Zählraten geeignet. Er ersetzt den in vorigen Arbeiten /1-5/ verwendeten Standard RC-Vorverstärker (widerstandsgekoppelt) vom Typ 2002CSL.

Die analoge Nuklearelektronik zur Weiterverarbeitung der vom Vorverstärker erzeugten Spannungsimpulse arbeitet mit durch die in Modulbauweise hergestellten Komponenten der Firmen Canberra und Ortec. Die Weiterverarbeitung des vom Vorverstärker erzeugten Spannungsimpuls erfolgt durch den Verstärker, Modell 2024 Fast Spectoscopy Amplifier der Fa. Canberra und den 16-bit-

Vielkanalanalysator mit integriertem ADC, Modell A^{Spec}-927 der Fa. Ortec. Im Verstärker werden die Spannungsimpulse des Vorverstärkers weiter verstärkt und im Standardfall auf eine Gauß-Form gebracht (unipolar output). Der verwendete Verstärker der Firma Canberra ist für die Verwendung von hohen Zählraten ausgelegt und kann im Gated Integrator Operation Modus den Spannungsimpulsausgang in eine Semi-Gauß-Form bringen. Das Ausgangssignal in Semi-Gauß-Form hat die gleiche Amplitude wie bei einer Gauß-Form, jedoch geschieht die Verarbeitung zu einer Semi-Gauß-Form schneller. Hieraus resultieren eine kürzere Verarbeitungszeit der Signale und damit ein höherer Datendurchsatz. Die Nutzung des Gated Integrator Operation Modus reduziert durch seine begrenzte Integrationsschaltung eine Verschlechterung der spektralen Auflösung bei geringen Zeitspannen für das Verarbeiten eines Spannungspulses. Dies ist besonders bei den hohen Zählraten einer P&DGNAA-Messung vorteilhaft. In diesen Zeitspannen für das Abtasten des Signals des Vorverstärkers können statistisch auftretende Schwankungen, die im Detektor selbst oder in den elektronischen Bauteilen entstehen, durch elektronische Integration herausgemittelt werden. Die Zeitkonstante der Integration bzw. Differentiation des Verstärkers wird als Shaping-Time τ_s bezeichnet. Eine lange Shaping-Time liefert ein besseres Signal-Rausch-Verhältnis und resultiert dadurch in einer besseren Auflösung. Die Shaping-Time sollte genügend groß gewählt werden, um die maximale Amplitude des Spannungsimpulses zu erfassen. Andererseits wird eine kleine Shaping-Time gefordert, um die Totzeit zu minimieren, was aber die spektrale Auflösung verschlechtert.

Der Analog-Digital-Wandler (ADC) wandelt die Amplitude des aus dem Hauptverstärker kommenden Impulses in eine zu ihr proportionale digitale Zahl. Diese Zahl wird in einem Vielkanalspeicher als Adresse eines Speicherplatzes, als Kanalzahl, interpretiert. Der Inhalt des Speicherplatzes wird jeweils beim Eintreffen eines Pulses an diese Adresse bzw. mit dieser Amplitude erhöht. Zusammen mit dem AD-Wandler bildet der Vielkanalspeicher den Vielkanalanalysator. Die mehrfache Wiederholung der Addition eines Digitalwertes ergibt die Impulse über der Kanalzahl, was als Impulshöhenspektrum bezeichnet wird. Eine Energiekalibrierung der Kanalzahlen ermöglicht die Umwandlung in ein Energiespektrum. Diese Energiekalibrierung geschieht jedoch erst in der Akquisitionssoftware GammaVision V.6.01. Während der Digitalisierung eines analogen Signals im ADC und während der Speicherung im Vielkanalspeicher kann kein weiteres Signal registriert werden, so dass diese Zeitdauer ebenfalls die Totzeit der Messtechnik beeinflusst. Die Totzeit bezeichnet die kürzeste Zeitspanne zwischen dem Anfang eines elektrischen Signals, das am Ausgang des Detektors entsteht, bis zu dem Moment, indem das nächste Signal registriert werden kann. Während der Totzeit ist die hinter dem Detektor geschaltete Elektronik noch nicht wieder bereit, ein weiteres Photon nachzuweisen.

Aufgrund der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse mit schnellen, epithermischen und thermischen Neutronen geschieht die Spektrenaufnahme bei MEDINA zeitaufgelöst. Jeder Messzyklus beginnt mit einem Neutronenpuls der Pulsdauer t_p, einer Wartezeit t_w und dann mit einer Akquisitionszeit zwischen den Pulsen t_c in der die Ereignisse im Detektor registriert werden. Dieser Zyklus wiederholt sich so lange

mit der Pulsperiode T, bis die eingestellte Messzeit abgeschlossen ist. Für die Akquisition muss somit das Zeitverhalten des Neutronengenerators über ein elektrisches Signal mit der Nuklearelektronik getriggert werden. Dazu wurden die zwei separaten Eingänge des Vierkanalanalysators über den Verzögerungsgenerator Model 9650A Gate-Delay-Generator der Fa. Signal Recovery mit dem Triggersignal des Neutronengenerators als Referenzsignal gespeist. Als Referenzsignal dient ein Signal aus dem Steuerungsmodul des Neutronengenerators, welches die Pulsfrequenz des Neutronengenerators wiedergibt. Der Verzögerungsgenerator ermöglicht es, das Triggersignal um ein Vielfaches von 0,01 ns zu verzögern und somit die Wartezeit t_w für die Akquisition des Messsignals festzusetzen. Die einstellbare Breite des logischen Ausgangssignals des Verzögerungsgenerators bestimmt die Akquisitionszeit t_c.

Die Kernstrahlungsmesstechnik wurde unter der Prämisse zusammengestellt, dass trotz des notwendigen großen Detektorvolumens, welches für eine vollständige Absorption hochenergetischer Prompt-Gamma-Strahlung notwendig ist und den zu erwartenden hohen Zählraten das Detektionssystem mit einer möglichst geringen Totzeit arbeitet. Bei hohen Zählraten, wie sie durch die P&DGNAA großer Massen entstehen, kann die Totzeit zwischen 10 und 30 Prozent der Echtzeit (real time) betragen. Die Differenz aus Echtzeit und Totzeit ist die bei den Auswertungen maßgebliche Zeit (life time). Nur eine Elektronik, die sehr schnell arbeitet, kann die für eine Analyse mit MEDINA benötigte Messzeit reduzieren. Aufgrund der verhältnismäßig großen Totzeit während der Messungen bei MEDINA wurden die Spektren für diese Arbeit in einem Totzeit korrigierten Modus (ZDT: Zero Dead Time Mode) der Akquisitionssoftware GammaVision für Windows Version 6.01 aufgenommen, d. h. die Zählratenverluste durch die Totzeit des Spektrometers wurden auf die Akquisitionszeit korrigiert (real time = life time). Da in diesem ZDT-Modus Totzeitverluste individuell für jeden Kanal berechnet werden, sind diese Totzeit korrigierten Spektren genauer als eine integrale Berücksichtigung der Totzeiteffekte auf die gesamte Messzeit.

5.7 Aktivierung des Detektorkristalls und Detektorabschirmung

Der HPGe-Detektor ist innerhalb der Graphitwandung positioniert und befindet sich somit während einer Messung im Neutronenfeld (siehe Abb. 5.13). Dieses Neutronenfeld erstreckt sich in Abhängigkeit der Zeitdauer nach einem Neutronenpuls energetisch von 14 MeV bis zum thermischen Bereich. Besonders thermische Neutronen, die zum Detektorkristall gelangen, haben einen großen Wirkungsquerschnitt für Kernreaktionen mit dem Germanium und können somit Aktivierungen verursachen. Die Wirkungsquerschnitte schneller Neutronen mit dem Germanium sind geringer, haben jedoch die gleichen negativen Auswirkungen. Langfristig verursachen diese schnelle Neutronen induzierten Kernreaktionen Strahlenschäden am idealen Detektorkristall, reduzieren das Auflösevermögen des Detektors und sind somit negativ für das Erreichen geringer Nachweisgrenzen. Durch diese Kernreaktionen entstehen entweder prompte oder verzögerte Gammaquanten (siehe Tab. 5.6). Bedingt durch die Entstehung im Detektorkristall und die hieraus resultierende hohe Nachweiseffizienz erhöhen diese emittierten Gammaquanten den aktiven Untergrund des Spektrums.

Je nach Bauart sind Halbleiterdetektoren sensitiver für Neutronenschäden. Der verwandte koaxiale HPGe-Detektor ist ein N-Type-Detektor. N- und P-Type Detektoren unterscheiden sich durch die effektive Dicke des Eintrittsfensters. Hierbei geht besonders die Dicke der Totschicht, d. h. der hochdotierten Schicht an der Oberfläche mit ein, wodurch man mit ionenimplantierten N-Type-Detektoren Photonen mit niedrigeren Energien nachweisen kann. P-Type-Kristalle sind dagegen in größeren Durchmessern erhältlich und ermöglichen so die Herstellung von Detektoren mit höheren Nachweiswahrscheinlichkeiten. Der bei der MEDINA-Anlage ausschlaggebende Vorteil bei der Verwendung eines N-Type-Detektors ist dessen bessere Resistenz gegen Strahlen- insbesondere Neutronenschäden /5-11/. Das ist dadurch begründet, dass besonders Löcher an den so erzeugten Haftstellen rekombinieren, ehe sie gesammelt werden. Im koaxialen N-Type-Detektor driften allerdings die Löcher zum Außenkontakt und haben so im Durchschnitt einen viel kürzeren Weg zurückzulegen als die Elektronen. Dadurch wird es trotz verminderter Lebensdauer der Löcher unwahrscheinlicher, dass diese rekombinieren, bevor sie die Elektrode erreichen. Diese theoretischen Überlegungen wurden mehrmals experimentell bestätigt /5-12/.

Grundsätzlich sollte die Aktivierung des Detektorkristalls vermieden werden. Die Aktivierung des Detektorkristalls schädigt die ideale Kristallstruktur des Germaniums und erhöht durch die induzierte Gamma-Strahlung im Detektorkristall den aktiven Untergrund einer Messung. Beide Effekte verursachen eine Verringerung der Nachweisgrenzen des Messverfahrens. Zu diesem Zweck wurde schon im Zusammenhang mit der Errichtung der Testeinrichtung für Fässer bis zu einem Volumen von 50 Litern eine wirksame Neutronenabschirmung hergestellt. Das Detektorgehäuse ist zur Vermeidung der Aktivierung des Germaniumkristalls durch thermische Neutronen mit einer ^{6}LiF-$^{6}Li_2CO_3$-Abschirmung ummantelt. Die Abschirmung besteht aus 30 ^{6}LiF-Plättchen, welche um den Detektormantel angebracht sind und 10 $^{6}Li_2CO_3$-Plättchen, die den Detektor an der Frontseite abschirmen. Die Plättchen weisen eine Dicke von 5 mm auf und sind mit einer Paste aus Wasserglas und $^{6}Li_2CO_3$ miteinander verklebt. Die genauen Spezifikationen und der Herstellungsprozess dieser Neutronenabschirmungen sind in /1-5/ beschrieben. Diese Abschirmung ist jedoch kein wirksamer Schutz für die durch schnelle Neutronen induzierten Kernreaktionen, die eine Gamma-Emission im Detektorkristall verursachen. In Tab. 5.6 werden die relevantesten durch schnelle Neutronen induzierten Kernreaktionen mit anschließender prompter oder verzögerter Gamma-Emission im Germaniumkristall des Detektors genannt.

Durch schnelle Neutronen induzierte Prompt-Gamma-Quanten können anhand der Form des Photopeaks im aktiven Untergrundspektrum erkannt werden. Ein einfallendes schnelles Neutron induziert nicht nur eine Kernreaktion, sondern versetzt durch seinen Impuls auch das Germaniumatom an eine andere Stelle im Kristallgitter. Die Bewegung dieses ionisierten Germaniumatoms im elektrischen Feld induziert ebenfalls ein Signal im Detektor. Dieses Signal ist koinzident mit den prompten Gamma-Quanten nach der Kernreaktion. Im Detektor werden somit beide Signale summiert. Dies führt zu einer Asymmetrie auf der hochenergetischen Flanke der beobachteten Gamma-Linie. Als bekanntes Beispiel ist hier der 691,3 keV Peak durch inelastische Streuung eines Neutrons an einem ^{72}Ge-Kern zu nennen. In den

Spektren aufgenommen mit der MEDINA-Anlage sind die durch Neutronen-Aktivierung des Detektorkristalls dominantesten Gamma-Quanten die durch ihre charakteristische Halbwertszeit verzögerten Photonen mit der Energie 53,4 keV (Zählrate 178,7 s^{-1}), 139,8 keV (Zählrate 145,1 s^{-1}) und 198,9 keV (Zählrate 131,5 s^{-1}). Die in den Klammern angegebenen Zählraten entstammen der Auswertung des aktiven Untergrundspektrums. Die Zählraten dieser verzögerten Gamma-Quanten können dazu dienen, den Neutronenfluss im Detektor zu quantifizieren. Dies kann z. B. genutzt werden, um die Güte einer Detektorabschirmung zu bewerten oder deren Funktionstüchtigkeit langfristig zu kontrollieren.

Tab. 5.6: *Auflistung von Kernreaktionen, die induziert durch schnelle Neutronen prompte und verzögerte Gamma-Quanten im Detektorkristall verursachen.*

Energie [keV]	**Kernreaktion**	**Anmerkungen**
562,9	^{76}Ge(n,n´)^{76}Ge	prompt
595,9	^{74}Ge(n,n´)^{74}Ge	prompt
608,4	^{74}Ge(n,n´)^{74}Ge	prompt
691,3	^{72}Ge(n,n´)^{72}Ge	prompt
834,0	^{70}Ge(n,n´)^{70}Ge	prompt
1039,6	^{73m}Ge Interne Konversion	$T_{1/2}$ = 500 ms
53,4	^{73m}Ge Interne Konversion	$T_{1/2}$ = 500 ms
66,7	^{73m}Ge Summenpeak (13,3 + 53,5 keV)	$T_{1/2}$ = 500 ms
136,0	^{75m}Ge Interne Konversion	$T_{1/2}$ = 47,7 s
139,8	^{75m}Ge Interne Konversion	$T_{1/2}$ = 47,7 s
174,9	^{70}Ge(n,γ)^{71m}Ge	$T_{1/2}$ = 22 ms
198,9	^{70}Ge(n,γ)^{71m}Ge	$T_{1/2}$ = 22 ms

5.8 Optimierung der Nuklearelektronik

Aufgrund der hohen Zählraten hochenergetischer Gamma-Strahlung im Spektrometer durch die Neutronen-Aktivierung eines 200-l-Fasses und der Bestrahlungskammer sollen die Parameter für die Bearbeitung des Signals optimiert werden. Die Zielgrößen der Optimierung sind eine schnelle Signalverarbeitung und damit geringe Totzeitverluste bei einer minimalen Verminderung der Auflösung. Das Auflösevermögen des Spektrometers, welches zur verbesserten Trennung von interferierenden Peaks signifikant ist und die Schnelligkeit der Signalverarbeitung, welche für die statistische Genauigkeit verantwortlich ist, sind konträr zueinander. Die Gewichtung dieser beiden Kriterien kann durch die Shaping-Time, die Zeitkonstante der Differentiation bzw. der Integration des Spannungssignals des Verstärkers, variiert werden. Des Weiteren verfügt der verwendete Spektroskopieverstärker der Fa. Canberra über einen Gated Integrator Operation Modus (siehe Kap. 5.6).

Anhand einer Parameterstudie wurden die für die im MEDINA-Messverfahren optimalen Einstellungen bestimmt. Hierzu wurden die drei Kalibrierquellen ^{60}Co (430 kBq ± 13 kBq, 1.10.2010), ^{137}Cs (393 kBq ± 12 kBq, 1.10.2010) und ^{152}Eu (370 kBq ± 12 kBq, 1.10.2010) 40 cm vom Detektorkristall entfernt platziert und für die zwei verschiedenen Arbeitsmodi des Verstärkers, *Unipolarmodus* und *Gated Integrator Operation* Modus, in Abhängigkeit der Shaping-Time die Totzeit und das Auflösevermögen des Spektrometers bestimmt. Die Shaping-Time variiert bei dieser Studie zwischen 0,5 µs und 8 µs. Es zeigte sich, dass bei zunehmender Shaping-Time die Totzeit des Spektrometers wie erwartet ansteigt (siehe Abb. 5.14).

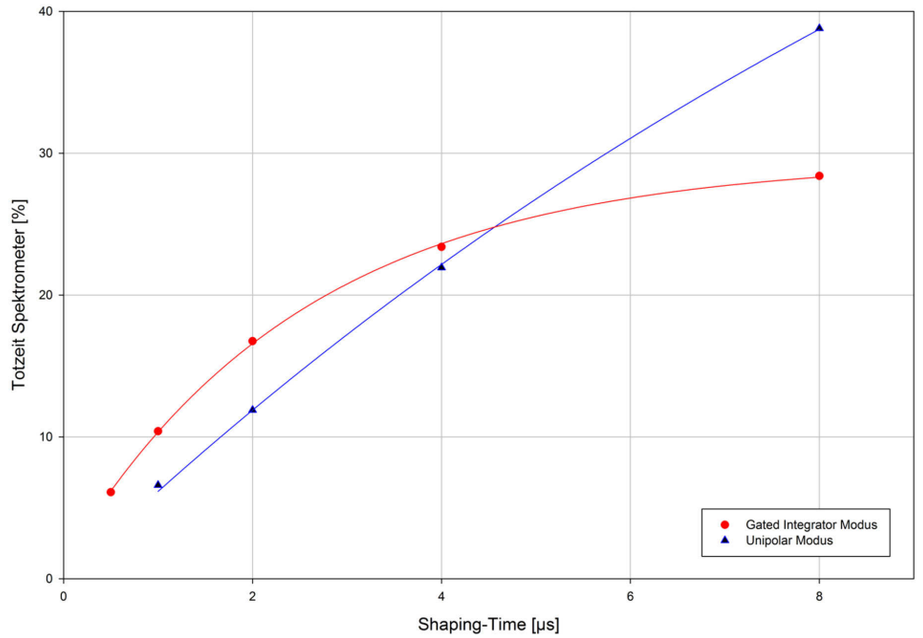


Abb. 5.14: *Totzeit des Spektrometers als Funktion der Shaping-Time bei Nutzung des Unipolarausgangs und des Gated Integrator Modus des Verstärkers.*

Für den *Unipolarmodus* verläuft die Zunahme der Totzeit im betrachten Bereich linear. Im *Gated Integrator Operation Modus* verläuft die Zunahme der Totzeit asymptotisch. Da das Spektrometer möglichst viele Signale in einer kurzen Zeit bearbeiten soll, scheint zunächst die Einstellung einer Shaping-Time von 0,5 µs oder 1 µs optimal, da hier Totzeiten bei dem beschrieben Experiment von unter 10 % erreicht werden können.

Als zweiter Parameter wird das Auflösevermögen des Spektrometers bei diesen Einstellungen untersucht. Zunächst wurde hierfür experimentell die Korrelation zwischen der Halbwertsbreite (engl. Full Width at Half Maximum, FWHM) und der Shaping-Time im Unipolarmodus des Verstärkers bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abb. 5.15 dargestellt und zeigen, dass in Abhängigkeit der Shaping-Time das

Auflösevermögen des Spektrometers mit zunehmender Energie ansteigt. Die Studie bestätigt die für den HPGe-Detektoren empfohlene Shaping-Time von 4 µs im Unipolarmodus des Verstärkers. Bei dieser Einstellung für die Integration des Spannungssignals des Vorverstärkers wurde die niedrigste Energieabhängigkeit des Auflösevermögens bestimmt.

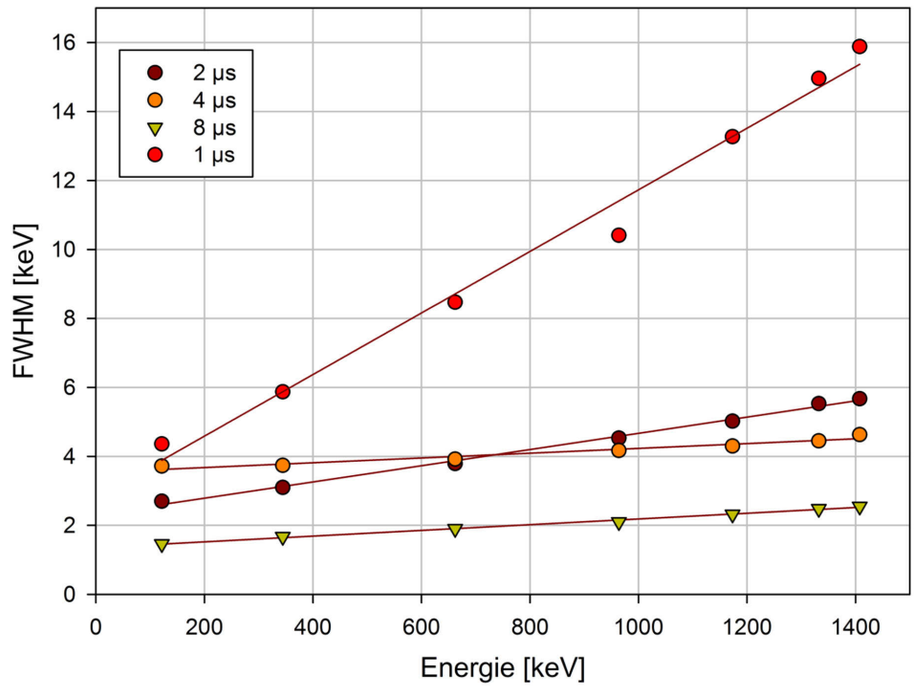


Abb. 5.15: *Energieabhängigkeit der Halbwertsbreite (FWHM) als Funktion der Shaping-Time bei Nutzung des Unipolarausgangs am Hauptverstärker des Spektrometers.*

Anschließend wurde der Einfluss der Shaping-Time im Gated Integrator Operation Modus auf die Energieauflösung des Spektrums untersucht. Das höchste Auflösevermögen wurde hier, wie im Unipolarmodus, bei einer Shaping-Time von 8 µs festgestellt (siehe Abb. 5.16). Eine solche Einstellung würde aber zu ungünstigen Totzeiteffekten führen (siehe Abb. 5.14). Die anderen Shaping-Time Einstellungen unterschieden sich nur geringfügig bzgl. Auflösevermögen und Energieabhängigkeit.

Die bei der Neutronen-Aktivierung im MEDINA-Messverfahren emittierten Gamma-Emissionen übersteigen die im Experiment verwendeten Kalibrierquellen erheblich, weshalb für die späteren Standardmessungen eine Shaping-Time von 0,5 µs im Gated Integrator Operation Modus ausgewählt wurde. Besonders hervorzuheben ist, dass die Leistungsfähigkeit des Hauptverstärkers im Gated Integrator Operation Modus zur Reduzierung von Totzeiteffekten bei hohen Zählraten bestätigt werden konnte.

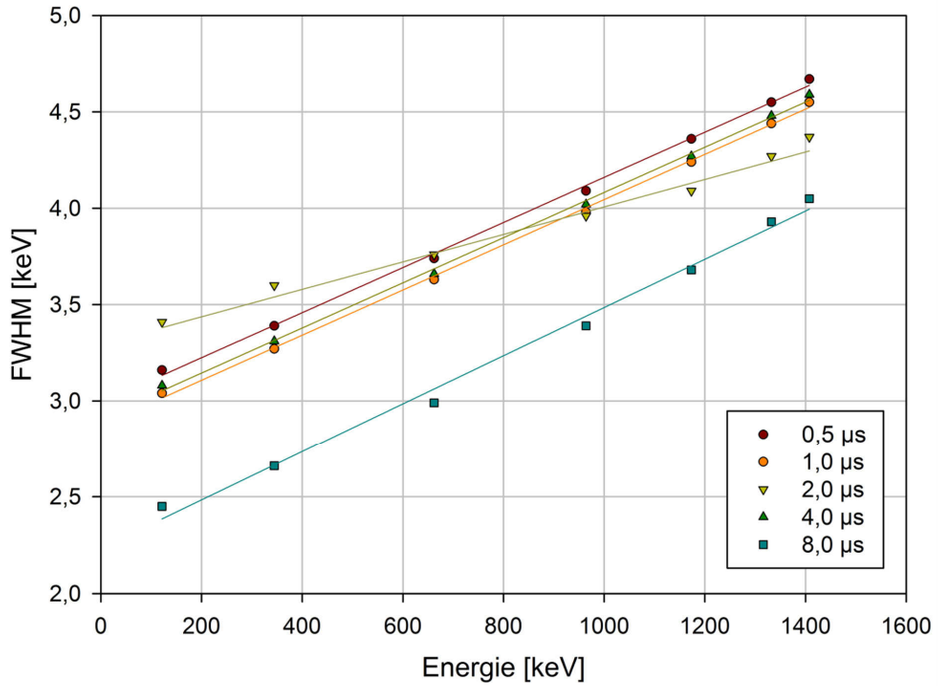


Abb. 5.16: *Energieabhängigkeit der Halbwertsbreite (FWHM) als Funktion der Shaping-Time bei Nutzung des Gated Integrator Operation Modus am Hauptverstärker des Spektrometers.*

5.9 Standardbestrahlungs- und Messparameter

Durch den Aufbau der Testeinrichtung und ein 200-l-Fass als Probekörper sind die festen Bestrahlungsparameter (siehe Tab. 4.5) wie z. B. Messgeometrie und Probengröße sowie Matrixeigenschaften der Probe usw. definiert. Durch die Einstellung der variablen Bestrahlungs- und Messparameter ist es mit der MEDINA-Testeinrichtung möglich, sämtliche der im Unterkapitel 4.3 aufgeführten Fälle der zyklischen Neutronen-Aktivierung-Analyse durchzuführen. Hierfür ist eine Adaption für der Bestrahlungs- und Messparameter auf den jeweiligen Fall notwendig.

Die Beschleunigungsspannung des Neutronengenerators beträgt bei den Standardbestrahlungsparametern 85 kV bei einem Ionenstrom von 40 µA. Diese Betriebsparameter resultieren in einer approximierten Neutronenquellstärke von $7{,}8 \cdot 10^7$ n $\cdot$ s^{-1}. Bei der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse beginnt jeder Messzyklus mit einem Neutronenpuls der Pulsdauer t_p, einer Wartezeit t_w und dann mit einer Akquisitionszeit zwischen den Pulsen t_c, in der die Ereignisse im Detektor registriert werden. Dieser Zyklus wiederholt sich so lange mit der Repetitionsrate T, bis die eingestellte Messzeit abgeschlossen ist. Die Analyse von 200-l-Fässern geschieht mit Hilfe des programmierbaren Drehteller winkelabhängig in Rotationsschritten von 45 Grad. Hierfür werden die beschriebenen Standardbestrahlungs- und

Messparameter mit einer Messzeit von 2000 s auf jeden Rotationsschritt angewandt. Eine komplette Analyse eines 200-l-Fasses besteht demnach aus acht winkelabhängigen Spektren und dauert ca. 4,5 Stunden. Da das optimale Peak- zu Untergrundverhältnis zur Detektion der meisten Kernreaktionen bei der PGNAA mit thermischen Neutronen erzielt wird, wurden hierfür die variablen Bestrahlungs- und Messparameter optimiert und für die in dieser Arbeit durchgeführten Messungen als Standard festgelegt.

Zur Optimierung der variablen Bestrahlungs- und Messparameter sollten innerhalb einer kurzen Pulsdauer t_p eine für die Analyse ausreichende Anzahl von Neutronen emittiert werden. Die anschließende Wartezeit t_w vor dem Beginn der Akquisition sollte so gering wie möglich sein, damit die Akquisitionszeit maximiert wird. Die Zeitspanne, wie lange nach dem Beginn des Neutronenpulses die Spektrenakquisition verzögert wird, orientiert sich nach der für die Moderation der Neutronen notwendigen Zeit und der mittleren Lebensdauer der thermischen Neutronen im Graphit. Beide Zeitverhalten sind überwiegend von der Graphitmasse der Bestrahlungskammer und danach als zweites von der Materialzusammensetzung des Probekörpers abhängig. Nur das Vorhandensein großer Massen von Moderatormaterial, wie wasserstoffhaltige Materialien innerhalb der Probe, könnten eine neue Zeiteinstellung bzw. eine Reduzierung der Wartezeit bedingen. Die Standardmessparameter gehen nicht von einer Reduzierung der Wartezeit durch einen zusätzlichen Moderator innerhalb der Probe aus und sind somit konservativ abdeckend für die Fälle ohne zusätzlich wirksame Moderatormasse in der Probe.

Die Standardmessparameter für eine diskrete winkelabhängige Spektrenaufnahme sind eine Untersuchungszeit von 2000 s (real time), eine Pulsperiode des Neutronenpulses von einer 1 ms (1 kHz), eine Neutronenpulsdauer von 50 µs, eine anschließende Wartezeit von 20 µs und eine Messzeit von 930 µs. Insgesamt wird somit eine Probe 100 s lang mit schnellen Neutronen bestrahlt. Die Dauer zum Auf- bzw. Abbau eines Neutronenpulses ist stets geringer als 1,5 µs.

Die Akquisitionszeit (acquisition time) beträgt bei den beschriebenen Standardmessparametern 93 % der Untersuchungszeit und führt somit zu einer Akquisitionszeit von 1860 s. Die Standardbestrahlungs- und Messparameter einer MEDINA-Messung werden zusammenfassend in Tab. 5.7 aufgeführt.

Tab. 5.7: Standardbestrahlungs- und Messparameter der MEDINA-Testeinrichtung.

Variable Bestrahlungsparameter	Standardmesseinstellung
Beschleunigungsspannung	85 kV
Ionenstrom	40 µA
Neutronenquellstärke	$7{,}8 \cdot 10^7$ n/s
Messdauer	2000 s
Neutronenpulsperiode (T)	1 ms
Neutronenpulsfrequenz (f)	1 kHz
Pulslänge (t_p)	50 µs
Bestrahlungszeit ($n \cdot t_p$)	100 s
Neutronemissionenenergie E_n	95 % mit 14,1 MeV, 5 % mit 2,45 MeV
Wartezeit (t_w)	20 µs
Messzeit (t_c)	930 µs
Akquisitionszeit ($n \cdot t_c$)	1860 s
Anzahl von Puls- und Messzyklen (n)	$2 \cdot 10^6$

5.10 Probabilistische Simulation

Im Vorfeld des Aufbaus der MEDINA-Testeinrichtung wurde eine detaillierte neutronenphysikalische Modellierung der Testeinrichtung durchgeführt. Der Fokus der durchgeführten numerischen Simulationen lag auf der Orts- und Zeitabhängigkeit (siehe Abb 4.1) des Neutronenflusses innerhalb der Anlage und dem 200-l-Fass als Probe. Anhand der Ergebnisse der numerischen Simulation wurde die Anlage konzipiert und die experimentelle Parametrisierung und Validierungsphase geplant. Die neutronenphysikalische Modellierung und Simulation der Testeinrichtung wurde mit dem Computer-Code MCNP durchgeführt /5-13/. Die Abkürzung MCNP steht für „Monte Carlo N-Particle Transport". Der Code ist eine Entwicklung des Los Alamos National Laboratory (LANL) in New Mexiko (Vereinigte Staaten von Amerika). In der vorliegenden Arbeit wurde die Version MCNP5 1.40 mit der amerikanischen Wirkungsquerschnittdatenbank „Evaluated Nuclear Data File, ENDF VII" verwendet. Der Code simuliert den gekoppelten Transport von Neutronen und Photonen. Darüber hinaus werden auch die Entstehung und der Transport von sekundären Elektronen mit berücksichtigt /5-13/. Das Programm simuliert jedoch nicht die gemäß der charakteristischen Halbwertszeit eines Radionuklids verzögert auftretenden Gamma-Emissionen, induziert durch eine Neutronen-Aktivierung. Des Weiteren kann der Code keine gepulste Neutronenquelle simulieren, weshalb die nachfolgenden Abbildungen den Neutronenfluss einer kontinuierlichen Neutronenquelle darstellen. Eine Korrektur des thermischen Neutronenflusses, wie er bei einer gepulsten Neutronenquelle in der Sättigung eintritt, ist jedoch für die Standardbestrahlungsparameter möglich (siehe Abb. 4.2). Eine Korrektur des epithermischen Neutronenflusses ist jedoch nicht möglich, da die Lebenszeit der epithermischen Neutronen nicht experimentell verifiziert wurde.

Die Qualität einer probabilistischen Simulation mittels MCNP ist von dem Vorhandensein und der Genauigkeit der verwendeten Wirkungsquerschnitte, der Anzahl der simulierten Quellneutronen, der

Korrektheit des Programmcodes sowie von der Genauigkeit der Modellierung der MEDINA-Testeinrichtung abhängig. Die Wirkungsquerschnitte sind in der verwendeten ENDF-Datenbank gespeichert und wurden im Dezember 2011 veröffentlicht /5-18/. Bei den durchgeführten Simulationen wurden die Wechselwirkungen und die Entstehung sekundärer Teilchen durch die Emission von $1 \cdot 10^8$ Neutronen probabilistisch berechnet.

In den nächsten Abbildungen wird die ortsabhängige Neutronenfluenz innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer dargestellt. Die Konturplots zeigen die relevanten Neutronenfluenzgradienten innerhalb des 200-l-Fasses und die Neutronenflussverteilung innerhalb der Graphitbestrahlungskammer. Die Verteilung der thermischen Neutronenfluenz für den Energiebereich von 10 meV bis 100 meV werden in Abb. 5.17 für ein 200-l-Fass mit Betonmatrix (links) und ein leeres 200-l-Fass (rechts) im Horizontalschnitt auf Höhe des Detektors bzw. der Mitte eines 200-l-Fasses dargestellt.

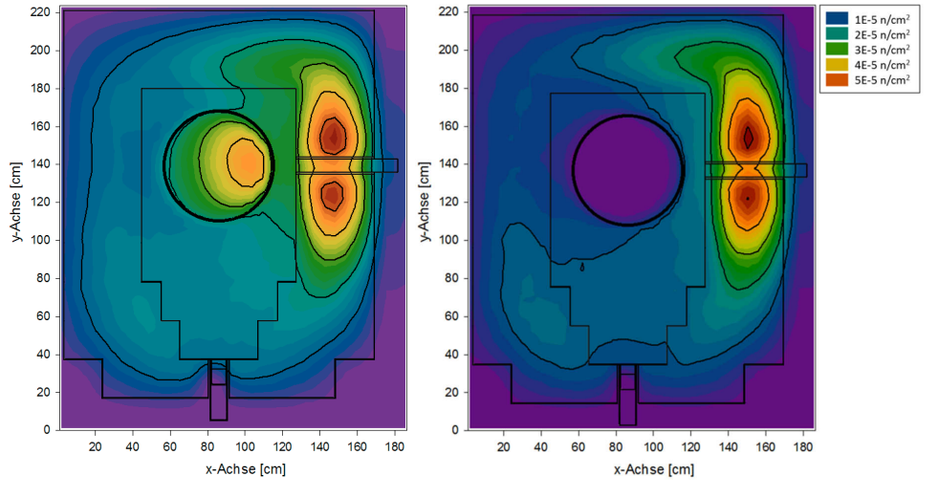


Abb. 5.17: *Simulation der ortsabhängigen thermischen Neutronenfluenz innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer.* ***Links:*** *Bestrahlungskammer beladen mit einem 200-l-Fass gefüllt mit Beton der Dichte 1,02 g/cm³.* ***Rechts:*** *Bestrahlungskammer beladen mit einem leeren 200-l-Fass. Die Konturplots zeigen die Neutronenfluenz im Horizontalschnitt auf der Höhe des Detektors (Energiebereich 10 meV bis 100 meV).*

Die höchste thermische Neutronenfluenz baut sich ca. 20 cm seitlich vom Titantarget des Neutronengenerators auf, welches sich auf der Abb. 5.17 bei der Position 150 cm auf der x-Achse und 140 cm auf der y-Achse befindet. Im Fall, dass das 200-l-Fass mit Beton gefüllt ist, baut sich durch die Moderation im 200-l-Fass ein höherer thermischer Neutronenfluss auf.

Die Verteilung der epithermischen Neutronenfluenz für den Energiebereich von 100 meV bis 1 eV wird in Abb. 5.18 für ein 200-l-Fass mit Betonmatrix (links) und ein leeres 200-l-Fass (rechts) im

Horizontalschnitt auf Höhe des Detektors dargestellt. Für den epithermischen Energiebereich sind die Neutronenfluenzgradienten im 200-l-Fass weniger groß als im thermischen Energiebereich.

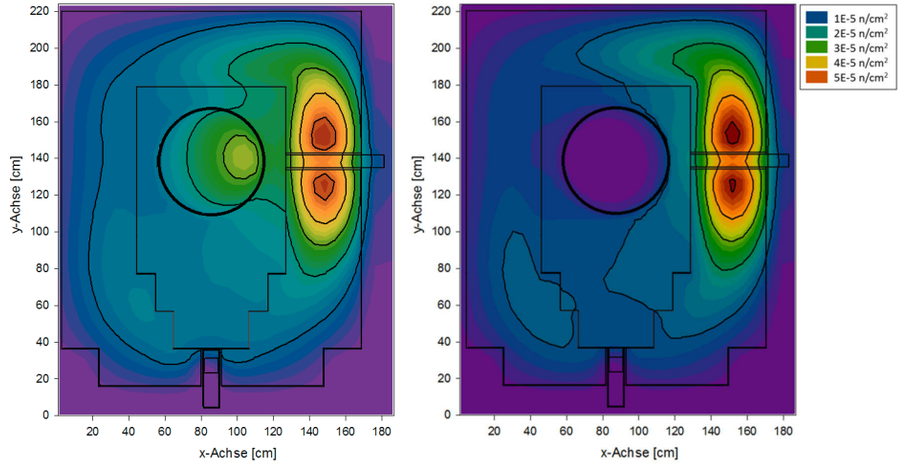


Abb. 5.18: *Simulation der ortsabhängigen epithermischen Neutronenfluenz innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer.* ***Links:*** *Bestrahlungskammer beladen mit einem 200-l-Fass gefüllt mit Beton der Dichte 1,02 g/cm³.* ***Rechts:*** *Bestrahlungskammer beladen mit einem leeren 200-l-Fass. Die Konturplots zeigen die Neutronenfluenz im Horizontalschnitt auf der Höhe des Detektors (Energiebereich 100 meV bis 1 eV).*

In Abb. 5.19 wird die Verteilung der thermischen Neutronenfluenz für den Energiebereich von 10 meV bis 100 meV für ein 200-l-Fass, gefüllt mit Beton, im Vertikalschnitt auf Höhe des Detektors dargestellt. Die Betonmatrix im 200-l-Fass führt dazu, dass die thermische Neutronenfluenz zum Fassmittelpunkt hin um Faktor 1,75 ansteigt.

In Abb. 5.20 wird die Verteilung der epithermischen Neutronenfluenz für den Energiebereich von 100 meV bis 1 eV für ein 200-l-Fass, gefüllt mit Beton, im Vertikalschnitt auf Höhe des Detektors dargestellt. Die dargestellten MCNP-Studien sind Ergebnisse der Konzeption der Bestrahlungskammer, wobei die Bestrahlungskammer die neutronenphysikalische Zielstellung hat, ein an der Fassmantelfläche homogenes Neutronenfeld zu generieren. Dies konnte anhand der dargestellten Konturplots gezeigt werden.

Die abschließende Validierung des MCNP-Modells der MEDINA-Anlage anhand des Vergleichs experimenteller Ergebnisse mit neutronenphysikalischen Simulationen wurde im Rahmen einer Kooperation mit der *CEA* - Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives durchgeführt und unter folgendem Titel veröffentlicht: „Quantitative comparison between PGNAA measurements and MCNP calculations in view of the characterization of radioactive wastes in Germany and France“ /5-15/5-16/.

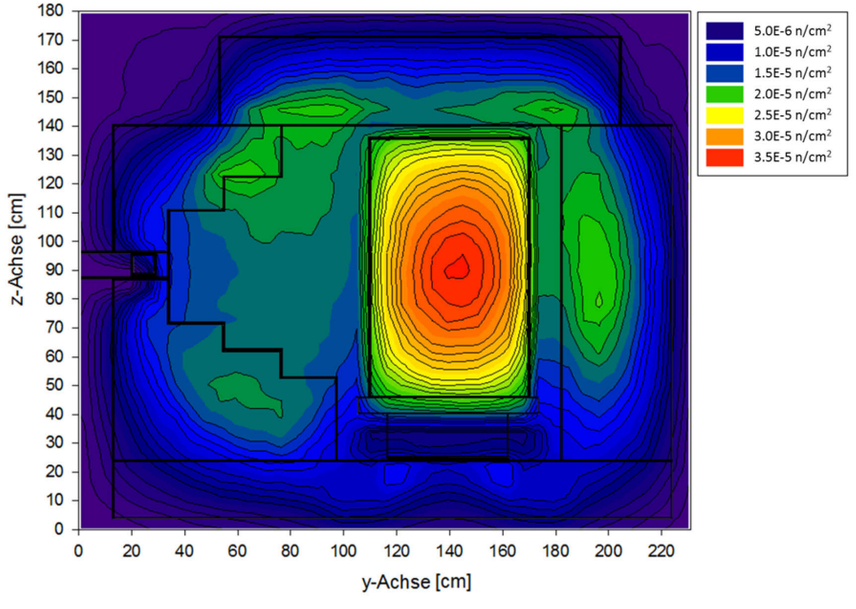


Abb. 5.19: *Simulation der thermischen Neutronenfluenz innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer beladen mit einem 200-l-Fass gefüllt mit Beton der Dichte 1,02 g/cm³. Der Konturplot zeigt die Neutronenfluenz im Energiebereich 10 meV bis 100 meV.*

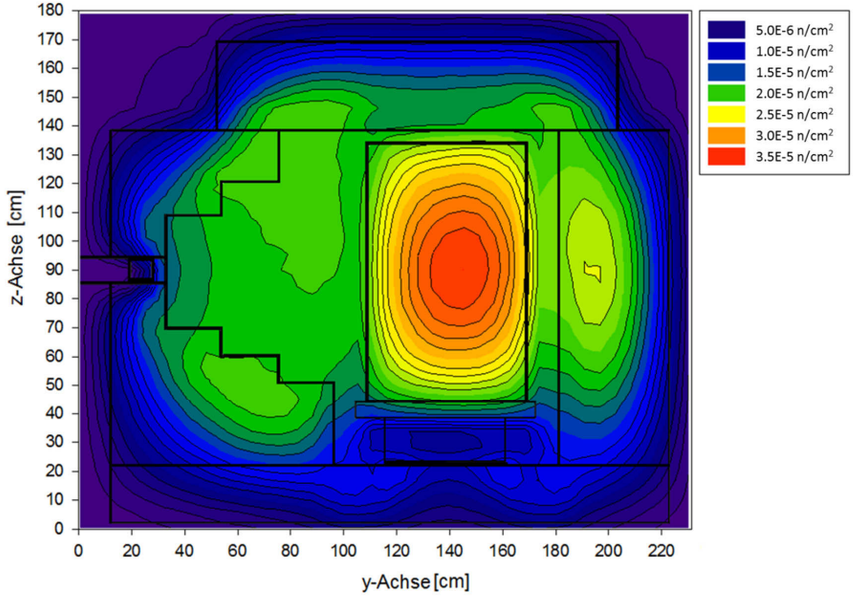


Abb. 5.20: *Simulation der epithermischen Neutronenfluenz innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer beladen mit einem 200-l-Fass gefüllt mit Beton der Dichte 1,02 g/cm³. Der Konturplot zeigt die Neutronenfluenz im Energiebereich 100 meV bis 1 eV.*

Kapitel 6

Herstellung von Referenzfässern

Zusammenfassung

Im Konditionierungsprozess, der Herstellung von endlagergerechten Abfallgebinden, werden radioaktive Abfälle meist in Fässern mit einem Fassungsvermögen von 200 Litern gelagert. Dieser Fasstyp ist auch international als Zwischenverpackung für radioaktive Abfallprodukte gebräuchlich. Im Endlagerungsverfahren Konrad gelten Fässer als Innenbehälter und müssen auf dem Abfalldatenblatt deklariert werden. Sie sind keine endlagergerechten Abfallbehälter. Die Qualifizierung von Abfallgebinden wird oft zweistufig vollzogen. Zunächst werden mit Abfall gefüllte Abfallfässer als Abfallprodukt mit voraussichtlicher Endlagerfähigkeit qualifiziert und nachfolgend das Konglomerat aus Abfallprodukt und endlagerzulässigem Abfallbehälter als Abfallgebinde qualifiziert. Als endlagergerechte Abfallbehälter sind Stahlblech- oder Betoncontainer sowie Gussbehälter in verschiedenen definierten Abmessungen zulässig.

Zur Validierung des MEDINA-Messverfahrens für die stoffliche Charakterisierung wurde ein 200-l-Stahlfass verwendet. Die zur Verpackung von radioaktiven Abfällen verwendeten 200-l-Stahlfässer unterscheiden sich nur geringfügig in ihren geometrischen Abmaßen, jedoch signifikant in ihrem Deckelsystem sowie in ihrer Nettomasse. In dem Kapitel wird das zur Validierung des MEDINA-Messverfahrens verwendete Abfallfass spezifiziert. Da in den experimentellen Messungen sowohl homogene als auch inhomogene Elementverteilungen untersucht werden sollen, wurden Betonformkörper erstellt, mit denen sich das Stahlfass modular befüllen lässt. Hierdurch kann als Abfallmatrix sowohl eine homogene Betonmatrix als auch die inhomogene Verteilung von wassergefährdenden Stoffen in einer Betonmatrix simuliert werden.

6.1 Spezifikation des 200-l-Referenzfasses

Die MEDINA-Messeinrichtung muss befähigt sein, in Masse und Geometrie alle handelsüblichen 200-l-Abfallfässer zu untersuchen. Die maximal zulässige Bruttomasse eines gefüllten Abfallfasses überschreitet nur in Ausnahmefällen 1000 kg. Bei den äußeren geometrischen Abmaßen von 200-l-Abfallfässern ist im MEDINA-Messverfahren besonders die Fasshöhe mit Deckel relevant. Diese Höhe definiert den minimal erforderlichen Abstand zwischen Germaniumdetektor und Stahlfass. Die Fässer, die bei der Konditionierung von radioaktiven Abfällen die größte Bauhöhe aufweisen, sind 200-l-Fässer mit Greifringdeckel. Bei dieser Bauform nimmt ein Greifer die Fässer für den Transport von innen am Deckel auf und führt dort eine form- und kraftschlüssige Verbindung durch. Als Referenzfass wurde ein solches 200-l-Rollreifenfass (200-l-RRW) mit Greifringdeckel ausgewählt. Für die Höhe des Fasses mit Deckel wurden inklusive Toleranz 930 mm veranschlagt. Diese Bauhöhe bedingt einen Abstand zwischen dem Mittelpunkt des Referenzfasses und dem Detektoreintrittsfenster von 105 cm. Für die spätere Skalierung des integralen thermischen Neutronenflusses an der Fassoberfläche ist die Netto-Fassmasse eine erforderliche Kenngröße. Die Netto-Fassmasse beträgt bei dem verwendeten Referenzfass 52,23 kg. Das 200-l-Fass besteht aus dem Werkstoff mit der Werkstoffnummer 1.0330. Es handelt sich um einen unlegierten Stahl mit einem geringen Kohlenstoffgehalt von nur 0,12 Ma-%. Neben Kohlenstoff sind 0,6 Ma-% Mangan, 0,45 Ma-% Schwefel und 0,45 Ma-% Phosphor im Stahl enthalten. Die weiteren Spezifikationen des Referenzfasses sind in Tab. 6.1 aufgeführt.

Tab. 6.1: Spezifikationen des Referenzfasses: 200-l-Rollreifenfass mit Greifringdeckel der Fa. Eisenwerk Bassum.

Spezifikationen	**Rollreifenfass 200 Liter mit Greifringdeckel**
Hersteller	Eisenwerke Bassum mbH
Typbezeichnung	KFA-RRW 207860
Werkstoff	1.0330 (unlegierter Stahl)
Wanddicke	1,5 mm
Höhe mit Deckel	928 mm
Bodenaußendurchmesser	579 mm
Maximaler Außendurchmesser	625 mm
Max. zulässige Bruttomasse	1000 kg
Fassgewicht mit Deckel	52,23 kg

6.2 Herstellung von Betonformkörpern

Radioaktive Abfälle werden aufgrund der kontaminationsbindenden und abschirmenden Wirkung von Beton häufig in 200-l-Fässern einbetoniert. Aufgrund der radionuklidrückhaltenden Wirkung des Betons ist bei betonierten Abfallgebinden (Abfallproduktgruppe 05) eine höhere Aktivitätsbeladung endlagergerechter Abfallgebinde zulässig als z. B. bei in Presstrommeln kompaktierten Abfällen (Abfallproduktgruppe 04) /1-1/. Einerseits werden bei einem Konditionierungsvorgang radioaktive Stoffe dem Beton als Zuschlagstoffe beigegeben und sind somit nahezu homogen in einer Betonmatrix verteilt. Dies geschieht z. B. bei Ionenaustauscherharzen oder radioaktiven Abwässern. Anderseits werden aktivierte bzw. kontaminierte feste Körper mit Beton übergossen und sind somit formstabil im Abfallbehälter fixiert. In diesem Fall ist die Radionuklidverteilung im Beton inhomogen. Der Fall der inhomogenen Verteilung der Radioaktivität sowie der wassergefährdenden Stoffe ist der häufiger auftretende Fall. Aus diesem Grunde sollen sowohl homogene als auch inhomogene Elementverteilungen in einer Betonmatrix untersucht werden. Obwohl ein vollständiger Betonverguss der jeweiligen Verteilung von wassergefährdenden Stoffen in einem 200-l-Fass realitätsnäher ist, ist ein solcher Vollverguss nicht praktikabel. Innerhalb der vorliegenden Arbeit wurden über 100 experimentelle Messungen mit einer inhomogenen Elementverteilung in einer Betonmatrix durchgeführt, welche bei einem Vollverguss nach einmaliger Messung hätten entsorgt werden müssen. Um eine Betonmatrix möglichst realitätsnah abzubilden, wurden zylindrische Betonformkörper aus einem Spezialbeton der Firma Franken Maxit GmbH & Co. hergestellt. Diese Betonformkörper wurden in das Referenzfass gestellt und simulierten dort eine reale Betonmatrix.

Der für die Formkörper verwendete Beton ist eine Spezialentwicklung für den Verguss von radioaktiven Abfällen und wurde im Auftrag der GNS Gesellschaft für Nuklear-Service mbH, Essen, hergestellt. Die Herstellung des Betons und der Verguss der Betonformkörper in Polymethylmethacrylat-Rohren (PMMA-Rohren) geschah gemäß einem vom Bundesamt für Strahlenschutz qualifizierten Verfahren und den Arbeitsanweisungen der GNS. In Abb. 6.1 sind die mit Beton vergossenen PMMA-Rohre in einer Holzkiste zu sehen. Die Holzkiste wurde zur Befüllung der PMMA-Rohre und für den Transport angefertigt.

Bei der Befüllung von Abfallbehältern oder den PMMA-Rohren ist besonders die Fallhöhe des Betons beim Verguss zu beachten und limitiert. Eine Überschreitung der Fallhöhe führt zu einer Entmischung des Betons. Die PMMA-Rohre wurden aus diesem Grund aufsteigend mit minimaler Fallhöhe vergossen. Des Weiteren wurde vor dem Verguss die innere Oberfläche mit einem Entschalungsmittel benetzt.



Abb. 6.1: *Mit Spezialbeton der Firma Franken Maxit GmbH & Co. verfüllte PMMA-Rohre.*

Anschließend wurden die mit Beton vergossenen PMMA-Rohre per Wasserstrahlschneidverfahren bei der Zentralabteilung Technologie (ZAT) im Forschungszentrum Jülich zertrennt. Das Wasserstrahlschneidverfahren wurde anderen Trennverfahren vorgezogen, weil im Gegensatz zu anderen abrasiven Schneidverfahren hierdurch gewährleistet werden konnte, dass der metallische Abrieb eines Trennwerkzeuges die Schnittkanten nicht kontaminiert. In Abb. 6.2 ist das Schnittbild eines Betonformkörpers inkl. PMAA-Rohr abgebildet. Es ist zu erkennen, dass keine Entmischung stattgefunden hat und die Zuschlagstoffe in der Betonmatrix homogen verteilt sind.



Abb. 6.2: *Schnittbild durch ein mit Spezialbeton verfülltes PMMA-Rohr.*

Die hergestellten Betonformkörper wurden bzgl. ihres Durchmessers von 110 mm so hergestellt, dass das Zwickelvolumen zwischen den Betonformkörpern bei der Befüllung des Referenzfasses möglichst gering ist (siehe Abb. 6.3 rechts). In Abb. 6.3 ist auf der linken Seite ein Betonformkörper mit einer Höhe von 200 mm dargestellt. Zusätzlich wurden noch Betonformkörper mit einer Höhe von 50 mm hergestellt.



Abb. 6.3 links: *Betonformkörper mit einem Durchmesser von 110 mm und einer Höhe von 200 mm,* ***rechts:*** *Mit Betonformkörpern gefülltes 200-l-Fass mit vier Ebenen zu je 19 Betonformkörpern.*

Die Masse pro Formkörper beträgt im Mittel 2,625 kg (200 mm Höhe) bzw. 0,613 kg (50 mm Höhe), woraus sich eine Dichte der Betonformkörper von 1,38 g/cm^3 ergibt. Füllt man ein 200-l-Fass komplett mit den Formkörpern mit der Höhe von 200 mm auf, so fasst ein 200-l-Fass vier Ebenen mit jeweils 19 Formkörpern pro Ebene. Die Masse dieser Verfüllung beträgt 199,5 kg, wodurch sich eine mittlere Dichte der Betonmatrix im 200-l-Fass von 1,02 g/cm^3 ergibt.

6.3 Elementanalyse der Betonmatrix

Die Informationen zur Elementanalyse der Betonmatrix beruhen auf verschiedenen Elementaranalysen. Die Herstellerangaben der Firma Franken Maxit GmbH & Co. zur Elementarzusammensetzung des Spezialbetons zur Verfüllung von radioaktiven Abfällen basieren auf Röntgenfluoreszenzanalysen und sind in Tab. 6.2 in der rechten Spalte aufgeführt. Zwecks Validierung der Herstellerangaben wurden drei Betonproben der abgegossenen Betonformkörper zum Institute of Isotopes an der Hungarian Academy of Science geschickt und dort am Forschungsreaktor in Budapest unter den gleichen Bedingungen wie die Graphit- und CFK-Proben bestrahlt und analysiert. Anhand der Ergebnisse der Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungsanalyse wurde die Elementarzusammensetzung bestimmt /5-8/. Die Ergebnisse der Analysen der drei Betonproben wurden gemittelt und sind in Tab. 6.2 in der linken Spalte dargestellt. Im Gegensatz zur Röntgenfluoreszenzanalyse erlaubt die PGNAA auch die Bestimmung von Elementen mit einer Ordnungszahl kleiner Z=5 (Bor). Des Weiteren sind die Empfindlichkeit und die Genauigkeit der durchgeführten PGNAA der Röntgenfluoreszenzanalyse überlegen. Dies spiegelt sich darin wider, dass mittels der PGNAA zusätzliche Verbindungen wie Bortrioxid (B_2O_3), Natriumoxid (Na_2O), Titanoxid (TiO_2) und Manganoxid (MnO) sowie Chlor (Cl) in der Betonmatrix nachgewiesen werden konnten. Die PGNAA erweitert und belegt die Herstellerangaben.

Tab. 6.2: *Elementarzusammensetzung der Betonformkörper basierend auf der Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (PGNAA) und der Röntgenfluoreszenzanalysen (RFA).*

Verbindung	**Konzentration bestimmt durch PGNAA [Ma-%]**	**Konzentration bestimmt durch RFA [Ma-%]**
H_2O	12,5 ± 0,18	12,5
B_2O_3	305 ± 4,3 ppm	/
Na_2O	0,70 ± 0,05	/
Al_2O_3	9,27 ± 0,18	9,5
SiO_2	37,0 ± 0,67	37
SO_3	1,66 ± 0,05	2
Cl	200 ± 6,6 ppm	/
K_2O	1,67 ± 0,04	2
CaO	32,33 ± 0,71	33
TiO_2	0,43 ± 0,01	/
MnO	0,098 ± 0,004	/
Fe_2O_3	4,00 ± 0,1	4
CoO	190 ± 32 ppm	/
CdO	0,49 ± 0,06 ppm	/
Sm_2O_3	3,25 ± 0,07 ppm	/
Gd_2O_3	4,1 ± 0,4 ppm	/

Kapitel 7

Experimentelle Anlagenparametrisierung

Zusammenfassung

Nach der Konzipierung und dem instrumentellen Aufbau der MEDINA-Testeinrichtung müssen für die Analyse von 200-l-Fässern diverse Kenngrößen experimentell ermittelt werden. Für eine quantitative Elementbestimmung muss die Photopeak-Effizienz des Spektrometers für ein 200-l-Fass bestimmt werden. Hierfür sind folgende Schritte notwendig: Im niederenergetischen Energiebereich geschieht die Effizienzkalibrierung anhand von Punktquellen. Die Effizienzkalibrierung im hochenergetischen Bereich wird mittels einer zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse, einer Natriumchloridprobe und einem 200-l-Stahlfass durchgeführt. Auf Grundlage dieser experimentellen Ergebnisse und numerischen Berechnungen wird die integrale Photopeak-Effizienz von Gamma-Emissionen aus der Stahlumhüllung eines 200-l-Fasses sowie aus einer Abfallmatrix bestimmt. Es wird das passive und das aktive Untergrundspektrum der MEDINA-Testeinrichtung registriert und ausgewertet. Das aktive Untergrundspektrum wird bei den Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen. Inwiefern eine Standardmessung zu einer Residualaktivität in der Bestrahlungskammer führt, wird ebenfalls untersucht. Des Weiteren wird der Einfluss, den das radioaktive Eigeninventar eines 200-l-Fasses auf eine Messung hat, experimentell simuliert und untersucht. Abschließend wird durch die Aufnahme von zeitabhängigen Gamma-Spektren die mittlere und maximale Lebensdauer von thermischen Neutronen innerhalb der Bestrahlungskammer bestimmt.

7.1 Bestimmung der Photopeak-Effizienz mittels Punktquellen

Die Kalibrierung des im MEDINA-Analyseverfahren eingesetzten Spektrometers setzt sich aus der Energiekalibrierung, der Auflösungskalibrierung und der Kalibrierung der Photopeak-Effizienz zusammen. Energie- und Auflösungskalibrierung sind notwendige Voraussetzungen für die Kalibrierung der Photopeak-Effizienz. Für sämtliche Kalibrierungen muss ein Kalibrierstandard verwendet werden, der den für die späteren Messungen gebräuchlichen Energiebereich ausreichend abdeckt.

Die Energiekalibrierung ist die Zuordnung zwischen der Kanalnummer des Vielkanalanalysators und der Energie der emittierten Gamma-Quanten der Kalibrierprobe. Die hierzu übliche Vorgehensweise im niederenergetischen Energiebereich, wie sie bei Freimessungen oder üblicher Gammaspektrometrie angewandt wird, ist in Kap. 6.7 der DIN IEC 973 „Prüfverfahren für Germanium-Gammastrahlungsdetektoren“ beschrieben /7-1/.

Die Energieauflösung des Spektrometers ist der kleinste Abstand zweier Energien, bei dem zwei interferierende Photopeaks noch getrennt ausgewertet werden können. Sie entspricht etwa der Halbwertsbreite (Full Width at Half Maximum, FWHM) jedes Peaks. Bei der Auflösungskalibrierung wird innerhalb der Spektroskopie-Software die energieabhängige Halbwertsbreite definiert. Die Auflösungskalibrierung sollte im Regelbetrieb durch wiederkehrende Messungen geprüft werden. Hierdurch können nachteilige Veränderungen des Germaniumkristalls durch Neutronenschäden sowie Unzulässigkeiten der Nuklearelektronik erkannt werden. Neutronenschäden am Germaniumkristall verschlechtern die spektrale Energieauflösung. Die Energie- und Auflösungskalibrierung wird bei jeder MEDINA-Messung durchgeführt.

Die Kalibrierung der Photopeak-Effizienz ist das Verhältnis zwischen der von einer Quelle emittierten und der im Detektor nachgewiesenen Gamma-Quanten. Da jedoch keine Standardpunktquellen existieren, die verzögerte Gamma-Quanten bis zu einer Energie von bis zu 10 MeV emittieren, kann für die Energie- und Effizienzkalibrierung nur im unteren Bereich des Energiespektrums auf die Verwendung des Standardverfahrens unter Verwendung von üblichen Punktquellen zurückgegriffen werden. Zur Effizienzkalibrierung im niederenergetischen Bereich kleiner 2 MeV dienen punktförmige Kalibrierquellen der Radionuklide:

- ^{60}Co ($T_{1/2}$: 5,27 a, 430 kBq ± 13 kBq am 1.10.2010),
- ^{137}Cs ($T_{1/2}$: 30,07 a 393 kBq ± 12 kBq, 1.10.2010),
- ^{152}Eu ($T_{1/2}$: 13,54 a, 370 kBq ± 12 kBq am 1.10.2010) und
- ^{241}Am ($T_{1/2}$: 5,27 a, 370 kBq ± 12 kBq am 1.10.2010.

Diese vier Kalibrierquellen wurden an die Position, die dem Mittelpunkt des Referenzfasses entspricht und sich auf der Höhe der Symmetrieachse des Detektors befindet, positioniert. Der Abstand der Quellen zu der Frontfläche des Detektors betrug 105 cm. Dieser Messpunkt entspricht dem Mittelpunkt eines 200-l-Fasses. Die Gamma-Spektren wurden über eine Messzeit von 10800 s (real time) aufgenommen. Die

Totzeit der Messung betrug 1,3 % der Messzeit. Die Gamma-Spektren wurden mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet. Die für die Berechnung der Photopeak-Effizienz relevanten Gamma-Linien inkl. derer Übergangswahrscheinlichkeiten I_γ sind in Tab. 7.1 /7-2/ zusammengefasst.

Tab. 7.1: *Für die Bestimmung der Photopeak-Effizienz einer Punktquelle analysierte Gamma-Linien im Energiebereich bis 2 MeV.*

Radionuklid	**Gamma-Energie [keV]**	I_γ [%]
^{60}Co	1173,23	99,97
^{60}Co	1332,50	99,99
^{137}Cs	661,66	85,1
^{152}Eu	121,78	25,9
^{152}Eu	344,31	2,4
^{152}Eu	841,59	52,5
^{152}Eu	963,39	43,2
^{152}Eu	1389,00	2,8
^{241}Am	59,54	35,9

Im Falle, dass die Halbwertszeit der Radionuklide deutlich größer als die Messzeit ist, kann aus der bekannten Aktivität einer Punktquelle A, der Übergangswahrscheinlichkeiten für ein Gamma-Quant I_γ, der Messzeit t_m und der detektierten Netto-Photopeakfläche P_{E_γ} die energieabhängige Photopeak-Effizienz für den Mittelpunkt des Referenzfasses $\varepsilon_{0(E_\gamma)}$ nach folgender Gleichung berechnet werden:

$$\varepsilon_{0(E_\gamma)} = \frac{P_{E_\gamma}}{A \cdot I_\gamma \cdot t_m} \qquad \text{Formelabschnitt 7} \qquad (7.1)$$

Als Ergebnis der Bestimmung der Photopeak-Effizienz sämtlicher in Tab. 7.1 aufgeführten Gamma-Linien ist in Abb. 7.1 die Energieabhängigkeit der Photopeak-Effizienz bis zu einem Energiebereich von 2 MeV dargestellt.

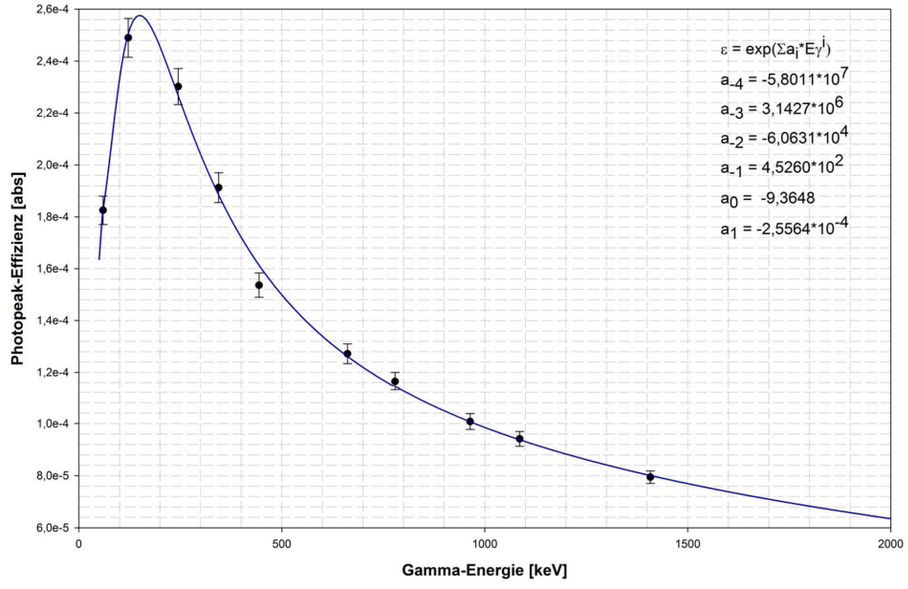


Abb. 7.1: *Photopeak-Effizienz einer Punktquelle als Funktion der Gamma-Energie. Die Punktquelle befindet sich auf der Höhe des Detektors in einem Abstand von 105 cm zu Detektorfrontfläche. Die Punkte sind experimentelle Daten aus den Messungen von Standardpunktquellen der Radionuklide Co-60, Cs-137, Eu-152 und Am-241. Die durchgezogene Linie ist die Approximationsfunktion gemäß Gl. 7.2 und den im Diagramm angegebenen Fit-Parametern.*

Die experimentellen Werte der Photopeak-Effizienz wurden mit einem exponentiellen Polynom als Funktion der Gamma-Energie mit folgender Gleichung gefittet:

$$\varepsilon_{0(E_\gamma)} = \exp\left(\sum_{i=-4}^{1} a_i \cdot E_\gamma^i\right) \tag{7.2}$$

Die resultierenden Fitparameter sind in Abb. 7.1 angegeben.

Für die Bestimmung der Photopeak-Effizienz im hochenergetischen Bereich bis 10 MeV wurden eine Natriumchlorid-Probe und das Referenzfass in der MEDINA-Testeinrichtung separat bestrahlt. Der Schwerpunkt der Natriumchlorid-Probe entsprach, wie die bei den Punktquellen, dem Mittelpunkt eines 200-l-Fasses. Das Stahlfass wurde auf dem Drehteller positioniert. Bei der Bestrahlung der Natriumchlorid-Probe und des Referenzfasses wurde der Neutronengenerator mit einer Beschleunigungsspannung von 72 kV und einem Ionenstrom von 12 µA im Pulsmodus betrieben. Dies entspricht einer Neutronenquellstärke von ca. $2 \cdot 10^7$ n/s. Die Frequenz des Neutronenpulses betrug 1 kHz. Die Dauer der Neutronenpulse wurde auf 100 µs festgelegt. Zwischen den Neutronenpulsen erfolgte nach einer Wartezeit von 20 µs eine Akquisitionszeit von 880 µs.

Die neutroneninduzierten Prompt-Gamma-Spektren wurden über eine Messzeit (real time) von 5000 s im ZDT-Modus aufgenommen und anschließend mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W bzgl. der Bestimmung der Netto-Peakfläche P_{E_γ} der Prompt-Gammas von Chlor und Eisen ausgewertet. Die Totzeit der Messungen betrug bei der NaCl-Probe 7,2 % und bei dem Stahlfass 6,7 % der Messzeit.

Die für die Berechnung der Photopeak-Effizienz relevanten prompten Gamma-Quanten von Chlor und Eisen sowie deren partielle Wirkungsquerschnitte sind in Tab. 7.2 und Tab. 7.3 aufgelistet.

Tab. 7.2: *Prompt-Gamma-Linien von Chlor für die Bestimmung der Photopeak-Effizienz im Energiebereich bis 7,4 MeV.*

Isotop	Gamma-Energie [keV]	Partieller Wirkungsquerschnitt [barn]
^{35}Cl	517,1	7,58
^{35}Cl	786,3	3,42
^{35}Cl	788,4	5,42
^{35}Cl	1164,9	8,91
^{35}Cl	1601,1	1,21
^{35}Cl	1951,1	6,33
^{35}Cl	1959,3	4,10
^{35}Cl	2863,8	1,82
^{35}Cl	3061,8	1,13
^{35}Cl	4979,8	1,23
^{35}Cl	5715,2	1,82
^{35}Cl	6610,8	6,59
^{35}Cl	6619,6	2,53
^{35}Cl	6627,8	1,47
^{35}Cl	7413,9	3,29

Tab. 7.3: Prompt-Gamma-Linien von Eisen für die Bestimmung der Photopeak-Effizienz im Energiebereich bis ca. 10 MeV.

Isotop	Gamma-Energie [keV]	Partieller Wirkungsquerschnitt [barn]
^{56}Fe	352,3	0,273
^{56}Fe	691,9	0,137
^{56}Fe	1260,4	0,0684
^{56}Fe	1612,8	0,1530
^{56}Fe	1725,3	0,181
^{56}Fe	4218,3	0,099
^{56}Fe	5920,4	0,225
^{56}Fe	6018,5	0,227
^{56}Fe	7278,8	0,137
^{56}Fe	7631,1	0,653
^{56}Fe	7645,5	0,549
^{54}Fe	9297,7	0,747

Die im Detektor nachgewiesene Prompt-Gamma-Emission des Chlors können für eine Bestimmung der Photopeak-Effizienz von einer Energie von 517 keV bis zu einer Energie von 7413 keV herangezogen

werden. Die Prompt-Gamma-Quanten des Eisens können für eine Effizienzkalibrierung von einer Energie von 352 keV bis zu einer Energie von 9297 keV verwendet werden.

Die Bestimmung der Photopeak-Effizienz oberhalb 2 MeV erfolgt mit einer Normierung auf eine durch die Punktquelle ermittelten Referenz-Photopeak-Effizienz $\varepsilon_{E_\gamma,ref}$ gemäß folgender Gleichung /1-5/:

$$\varepsilon_{E_\gamma,n} = \frac{P_{E_\gamma}}{P_{E_\gamma,ref}} \cdot \frac{\sigma^z_{E_\gamma,ref}}{\sigma^z_{E_\gamma,n}} \cdot \varepsilon_{E_\gamma,ref} \cdot \alpha_i \tag{7.3}$$

Die Normierung ist erforderlich, da sich die Photopeak-Effizienz, die von Gamma-Quanten aus einem Volumenkörper emittiert werden, aufgrund ihrer Geometrie und der Absorptionseffekten im Körper, von einer Punktquelle unterscheidet. Die Bestimmung des Geometriefaktors α_i, der die Geometrie- und Absorptionseffekte berücksichtigt sowie das genaue Verfahren der Normierung sind in /1-5/ beschrieben. Als Ergebnis der Normierung werden Effizienzwerte bestimmt, bei deren Fittung eine Funktion folgt, die einen Schnittpunkt mit der Effizienzfunktion für die Punktquellen hat und sich somit über den niederenergetischen und hochenergetischen Energiebereich erstreckt. Die Photopeak-Effizienzkurve für eine Gamma-Emission vom Mittelpunkt eines 200-l-Fasses über den Energiebereich von 59 keV bis 9300 keV ist in Abb. 7.2 dargestellt. Von 60 keV bis 110 keV nimmt die Effizienz des Spektrometers zu und nachfolgend wieder ab.

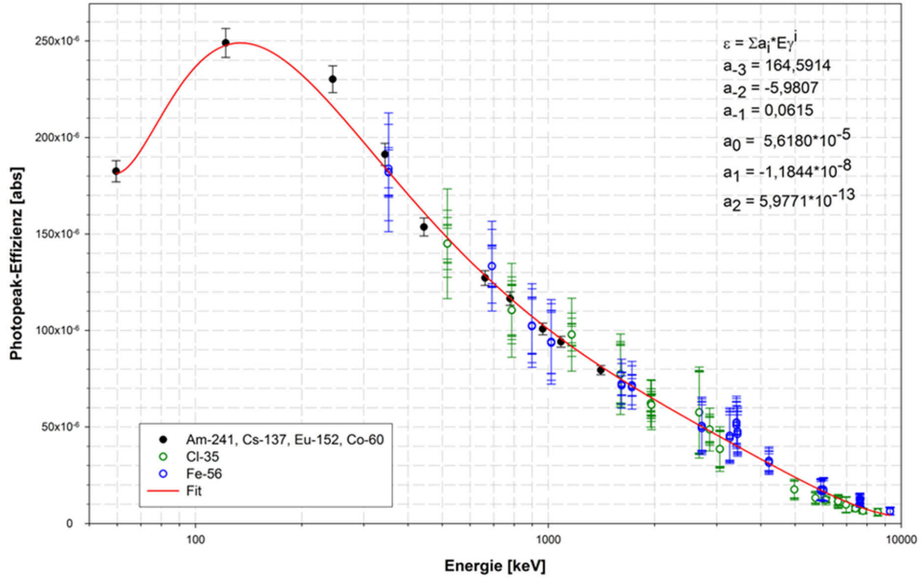


Abb. 7.2: *Photopeak-Effizienz als Funktion der Gamma-Energie. Die Werte der Photopeak-Effizienz wurden experimentell durch Messungen mit Standardpunktquellen der Radionuklide Co-60, Cs-137, Eu-152 und Am-241 (niederenergetischer Bereich) sowie durch Neutronen-Aktivierung einer Natriumchlorid-Probe und Eisen-Probe (hochenergetischer Bereich) ermittelt.*

Die experimentellen Daten wurden mit einer Polynomfunktion gefittet:

$$\varepsilon_{0(E_\gamma)} = \sum_{i=-3}^{2} a_i \cdot E_\gamma^i \tag{7.4}$$

Die resultierenden Fitparameter sind in Abb. 7.2 angegeben.

7.2 Effizienzkalibrierung für 200-l-Fässer

Die Nachweiswahrscheinlichkeit für aus einem Volumen emittierte Gamma-Quanten wird als integrale Photopeak-Effizienz bezeichnet. Die Bestimmung der integralen Photopeak-Effizienz für Gamma-Quanten, welche aus dem Inneren eines 200-l-Fasses (Abfallmatrix) oder dem Stahlmantel emittiert werden, erfolgt durch eine numerische Berechnung mit folgender Gleichung /1-5/:

$$\varepsilon_{(E_\gamma)} = \frac{1}{N} \cdot \sum_{i=1}^{N} \left(\exp\left(-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_S \cdot \rho_S \cdot d_{S,i} \right) \cdot \exp\left(-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_M \cdot \rho_M \cdot d_{M,i} \right) \cdot \varepsilon_{0(E_\gamma)} \cdot \left(\frac{d_0}{d_i}\right)^2 \right) \tag{7.5}$$

Notwendig hierfür ist die im vorigen Kapitel bestimmte Photopeak-Effizienz $\varepsilon_{0(E_\gamma)}$ für den Mittelpunkt eines 200-l-Fasses. Der Abstand einer simulierten Punktquelle zur Detektorfrontfläche ist d_i. Bei den Größen $d_{M,i}$ und $d_{S,i}$ handelt es sich um die Wegstrecken in der Abfallmatrix bzw. die Wanddicke des Stahlfasses, die von den Photonen auf dem Weg zum Detektor durchquert werden. Die Absorptionseigenschaften des Fasses sind über die Massenschwächungskoeffizienten der Abfallmatrix $\left(\mu/\rho\right)_M$ und des Stahlfasses $\left(\mu/\rho\right)_S$ beschrieben.

Für die numerischen Berechnungen der Effizienzwerte gemäß Gl. 7.5 werden simulierte Punktquellen der Anzahl N statistisch über ein definiertes Volumen verteilt und emittieren Gamma-Quanten mit unterschiedlichen Energien. Die Massenschwächungskoeffizienten werden in Abhängigkeit der Gamma-Energie angepasst. Für die Analyse eines 200-l-Fasses ist die integrale Photopeak-Effizienz für die Emission von Gamma-Quanten aus dem Fasskörper (Mantelfläche, Boden, Deckel) sowie der Abfallmatrix relevant. Die verschiedenen Fälle, die bei der Verteilung der simulierten Punktquellen eintreten können, sind in Abb. 7.3 verbildlicht. Der rote Punkt entspricht der Mitte eines 200-l-Fasses. Die blauen Punkte verbildlichen Gamma-Emissionen aus der Abfallmatrix. Aus der Abfallmatrix emittierte Gamma-Quanten werden durch die Abfallmatrix selbst und den Fassmantel abgeschwächt. Die gelben und grünen Punkte befinden sich auf dem Stahlmantel des Fasses. Von den gelben Punkten emittierte Gamma-Quanten werden nur durch den Stahlmantel abgeschwächt. Gamma-Quanten aus den grünen Punkten passieren bei einem Nachweis im Detektor den Stahlmantel und die Abfallmatrix.

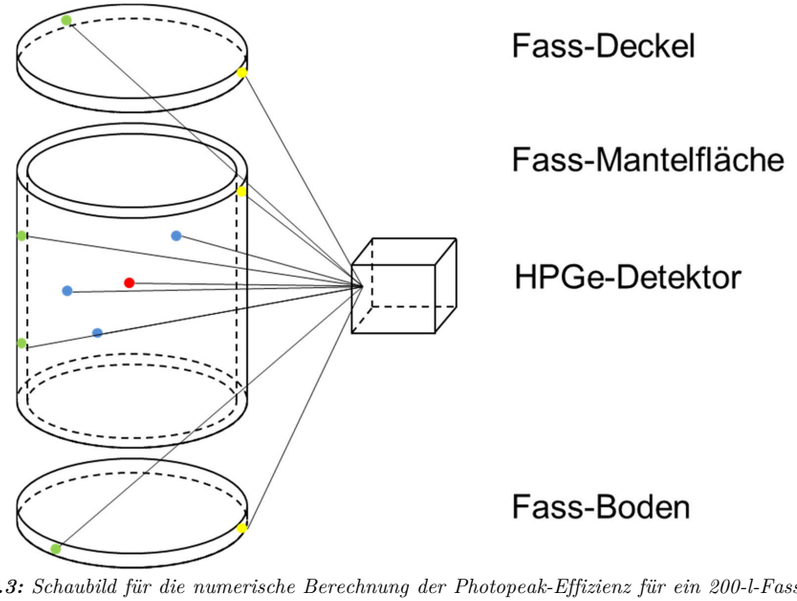


Abb. 7.3: *Schaubild für die numerische Berechnung der Photopeak-Effizienz für ein 200-l-Fass. Der rote Punkt ist der Mittelpunkt eines 200-l-Fasses. Die blauen Punktquellen befinden sich in der Abfallmatrix. Der gelbe und die grünen Punktquellen befinden sich auf der Mantelfläche des Fasses.*

Die Berechnung der integralen Photopeak-Effizienz von Gamma-Emission aus einem 200-l-RRW-Fass gemäß Gl. 7.5 wurden für folgende Bezugsvolumina bzw. unter folgenden Randbedingungen durchgeführt:

- Integrale Photopeak-Effizienz für Gamma-Emissionen aus dem Fasskörper
- Integrale Photopeak-Effizienz für Gamma-Emissionen aus dem Fasskörper eines mit Beton gefüllten 200-l-RRW-Fasses und
- Integrale Photopeak-Effizienz für Gamma-Emissionen aus einer Betonmatrix.

Zur Bestimmung des Massenschwächungskoeffizienten der Betonmatrix wurde die Elementarzusammensetzung des Betons gemäß Tab. 6.3 unterstellt. Für die mittlere Dichte der Betonmatrix im 200-l-Fass wird der Wert von 1,02 g/cm³ verwendet. Diese gemittelte Dichte der Betonmatrix ergibt sich, wenn man ein 200-l-Fass komplett mit den für MEDINA erstellten Formkörpern aus Beton befüllt und somit die Masse der Matrix 199,5 kg beträgt (siehe Kapitel 6.2). Die Wandstärke des Stahlmantels des 200-l-RRW-Fasses beträgt 1,5 mm. Die Blechdicken von Fassboden und Fassdeckel werden für die Simulation über das Gewicht dieser Komponenten sowie deren Geometrie hergeleitet. Es wird eine Stahldichte von 7,84 g/cm³ verwendet. Da die Höhe der Betonmatrix nicht das gesamte Nettovolumen des Fasses ausfüllt, wurde eine Höhe von 835 mm festgelegt. Der Fassdurchmesser beträgt 56 cm. Die Energieabhängigkeit der Photopeak-Effizienzen für die oben genannten Fälle und Randbedingungen berechnet nach Gl. 7.5 sind in Abb. 7.4 dargestellt. Die innere Betonmatrix führt im Vergleich zu einem leeren Fass dazu, dass die maximale Photopeak-Effizienz für den Nachweis von einer Gamma-Emission aus der Mantelfläche und dem Boden und Deckel eines 200-l-RRW-Fasses bei einer Energie von ca.

200 keV um 36 % reduziert wird. Unterhalb und oberhalb von 200 keV nimmt der reduzierende Einfluss der Betonmatrix auf die Photopeak-Effizienz ab. Grundsätzlich zeigen die integralen Photopeak-Effizienzen für Gamma-Emissionen aus der Stahlmantelumhüllung eine ähnliche Energieabhängigkeit wie für eine Gamma-Emission vom Mittelpunkt eines 200-l-Fasses. Dies ist damit zu begründen, dass aus der dem Detektor zugewandten Stahlumhüllung Gamma-Quanten emittiert werden, die keine oder nur geringe Abschirmstrecken durch die Stahlumhüllung oder die Abfallmatrix durchqueren. Diese Gamma-Quanten haben anteilig eine hohe Effizienz an der integralen Photopeak-Effizienz.

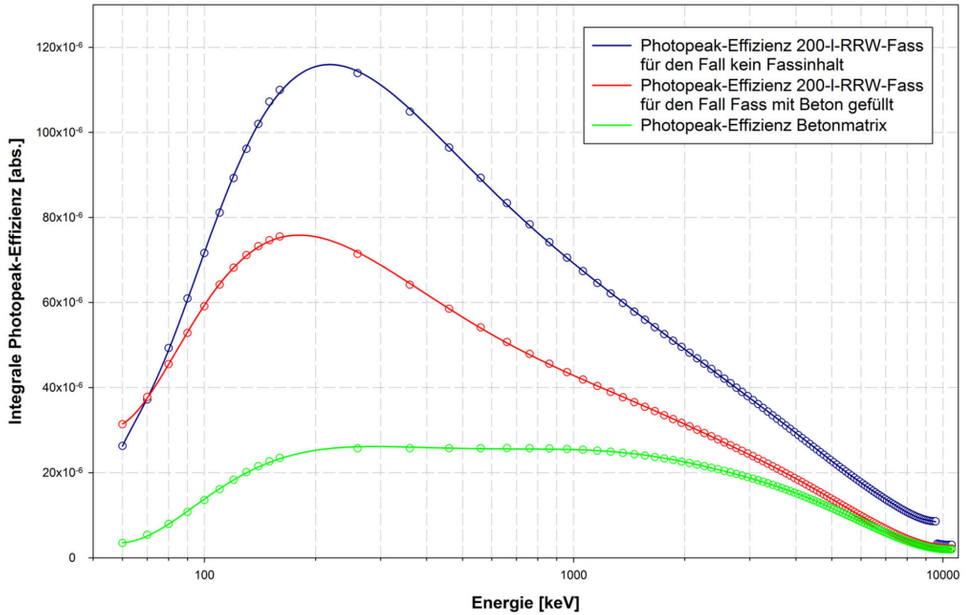


Abb. 7.4: Integrale Photopeak-Effizienzen eines 200-l-RRW-Fasses (Stahlkörper) und der Betonmatrix als Funktion der Gamma-Energie.

Die integrale Photopeak-Effizienz für eine Gamma-Emission aus der Betonmatrix weist einen charakteristisch anderen Verlauf als die Photopeak-Effizienz des 200-l-RRW-Stahlfasses auf. Zwischen einer Energie von 200 keV und einer Energie 2000 keV zeigt sich bei der Energieabhängigkeit der Photopeak-Effizienz für Gamma-Quanten, die aus der Betonmatrix emittiert werden, ein Plateau in dem eine nur geringfügige Energieabhängigkeit der Effizienzwerte besteht. Begründet ist dieser Verlauf durch zwei physikalische Effekte, die sich gegenseitig kompensieren. Mit zunehmender Gamma-Energie sinkt die Photopeak-Effizienz des Detektors genauso wie die Selbstabsorption der Gamma-Strahlung innerhalb der Betonmatrix. Die Reduktion der Wechselwirkungen der Gamma-Strahlung durch die Effekte Photoeffekt, Comptonstreuung und Paarbildung führt zu einer Zunahme der Photopeak-Effizienz und kompensiert somit über den genannten Energiebereich die mit zunehmender Gamma-Energie abnehmende Photopeak-Effizienz des Spektrometers. Ab einer Energie von ca. 2000 keV dominiert jedoch der Effekt der Reduktion der Photopeak-Effizienz.

7.3 Passives Untergrundspektrum

Das passive Untergrundspektrum ist das Gamma-Spektrum, das bei leerer Bestrahlungskammer und während der Neutronengenerator nicht in Betrieb ist, aufgenommen wird. Bevor das passive Untergrundspektrum aufgenommen wurde, ist die Kammer im Rahmen der behördlichen Abnahme ca. eine Stunde im Testbetrieb bei max. Neutronenquellstärke betrieben worden. Zwischen dem behördlichen Testbetrieb und der Aufnahme des Gamma-Spektrums lagen mehrere Tage Abstand. Das passive Untergrundspektrum wurde über eine Messzeit von 6 Tagen aufgenommen und anschließend mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet. Die im passiven Untergrundspektrum nachgewiesenen und analysierten Gamma-Quanten sowie die zugeordneten Isotope sind in Tab. 7.4 aufgelistet /7-1/.

Tab. 7.4: *Nachgewiesene Gamma-Linien und zugeordnete Isotope im passiven Untergrundspektrum.*

γ-Energie [keV]	**Isotop**	**Brutto-Fläche**	**Netto-Peakfläche**	**Fehler [%]**	**Zählrate [s^{-1}]**
63,3	^{234}Th (^{238}U)	9629822	3786308	19,8	7,30
238,6	^{212}Pb (^{232}Th)	1957709	296747	4,3	0,57
270,3	^{228}Ac (^{232}Th)	2064776	18758	9,3	0,04
277,4	^{208}Tl (^{232}Th)	2064776	11769	11,2	0,02
295,2	^{212}Bi + ^{214}Pb (^{232}Th)	2064776	31034	5,9	0,06
300,0	^{212}Pb (^{232}Th)	2064776	17411	6,8	0,03
328,0	^{228}Ac (^{232}Th)	1520949	9678	8,8	0,02
338,6	^{228}Ac (^{232}Th)	1520949	29063	3,8	0,06
343,5	^{152}Eu	1520949	14959	6,1	0,03
351,9	^{214}Pb (^{238}U)	1520949	67299	3,3	0,13
463,0	^{228}Ac (^{232}Th)	369982	9185	16,4	0,02
511,0	kosmisch	352157	61218	2,8	0,12
562,5	^{228}Ac (^{232}Th)	287843	5068	17,5	0,01
583,2	^{208}Tl (^{232}Th)	758126	157659	4,3	0,30
609,3	^{214}Bi (^{238}U)	758126	77235	3,7	0,15
665,5	^{214}Bi (^{238}U)	224457	5596	14,3	0,01
727,2	^{214}Bi (^{238}U)	219618	37855	3,1	0,07
755,3	^{228}Ac (^{232}Th)	745119	3099	15,9	0,01
763,1	^{208}Tl (^{232}Th)	745119	5811	12,3	0,01
768,4	^{214}Bi (^{238}U)	745119	11510	10,5	0,02
778,9	^{152}Eu	745119	9472	9,5	0,02
785,4	^{212}Bi (^{238}U)	745119	9093	8,4	0,02
794,9	^{152}Eu + ^{228}Ac (^{232}Th)	745119	12796	7,9	0,02
807,6	^{213}Bi(^{233}U)	745119	3629	9,7	0,01
813,8	^{228}Ac (^{232}Th)	745119	2236	14,0	0,004
835,1	^{228}Ac (^{232}Th)	745119	6113	7,0	0,01
840,3	^{228}Ac (^{232}Th)	745119	3736	10,8	0,01
860,6	^{208}Tl (^{232}Th)	151595	22497	4,2	0,04
867,4	^{152}Eu	151595	2104	13,5	0,004
893,4	^{212}Bi (^{238}U)	364711	2223	20,0	0,004
904,2	^{228}Ac (^{232}Th)	364711	2244	15,6	0,004
911,2	^{228}Ac (^{232}Th)	364711	63988	4,9	0,12
934,0	^{214}Bi (^{238}U)	364711	5664	9,5	0,01

Tab. 7.4, Fortsetzung: *Nachgewiesene Gamma-Linien und zugeordnete Isotope im passiven Untergrundspektrum.*

γ-Energie [keV]	**Isotop**	**Brutto-Fläche**	**Netto-Peakfläche**	**Fehler [%]**	**Zählrate [s⁻¹]**
949,8	^{214}Bi (^{238}U)	251588	2415	12,0	0,004
964,7	^{228}Ac (^{232}Th)	251588	22054	3,2	0,04
968,9	^{228}Ac (^{232}Th)	251588	42633	2,5	0,08
1001,0	^{234m}Pa (^{238}U)	96744	3148	12,0	0,01
1005,3	^{152}Eu	96744	1541	17,5	0,003
1078,6	^{212}Bi (^{232}Th)	318675	3088	13,5	0,01
1085,9	^{152}Eu	318675	8482	9,2	0,02
1093,7	^{208}Tl (^{232}Th)	318675	1785	22,9	0,003
1110,6	^{152}Eu + ^{228}Ac (^{232}Th)	318675	11743	5,8	0,02
1120,3	^{214}Bi (^{238}U)	318675	28097	5,6	0,05
1155,2	^{214}Bi (^{238}U)	195277	3268	10,8	0,01
1173,0	^{60}Co	195277	48232	3,4	0,09
1238,0	^{214}Bi (^{238}U)	86146	11370	6,6	0,02
1274,4	^{154}Eu	108239	1523	12,8	0,003
1280,9	^{214}Bi (^{238}U)	108239	2982	8,5	0,01
1332,5	^{60}Co	111093	50870	2,7	0,10
1377,7	^{214}Bi (^{238}U)	155334	7571	5,3	0,01
1385,3	^{214}Bi (^{238}U)	155334	1323	19,7	0,003
1401,5	^{214}Bi (^{238}U)	155334	2730	8,5	0,01
1407,9	^{152}Eu + ^{214}Bi (^{238}U)	155334	20812	4,3	0,04
1460,8	^{40}K	270155	203222	1,9	0,39
1495,9	^{228}Ac (^{232}Th)	50258	2265	11,2	0,004
1501,6	^{228}Ac (^{232}Th)	50258	1113	18,2	0,002
1529,3	^{228}Ac (^{232}Th)	50258	5020	8,7	0,01
1580,5	^{228}Ac (^{232}Th)	57901	2248	6,6	0,004
1588,2	^{228}Ac (^{232}Th)	57901	9350	3,0	0,02
1593,8	^{234}Pa (^{238}U)	57901	7418	3,5	0,01
1620,5	^{212}Bi (^{232}Th)	53785	8707	4,7	0,02
1630,6	^{228}Ac (^{232}Th)	53785	4444	5,4	0,01
1638,3	^{228}Ac (^{232}Th)	53785	1310	13,8	0,003
1661,3	^{214}Bi (^{238}U)	20029	2076	14,5	0,004
1683,9	^{214}Bi + ^{228}Ac	41911	1214	15,2	0,002
1693,4	^{214}Bi (^{238}U)	41911	1009	17,2	0,002
1729,6	^{214}Bi (^{238}U)	34336	5956	6,8	0,01
1764,5	^{214}Bi (^{238}U)	58509	31422	2,3	0,06
1806,0	^{212}Bi (^{232}Th)	63155	805	19,8	0,002
1838,4	^{214}Bi (^{238}U)	63155	874	16,1	0,002
1847,4	^{214}Bi (^{238}U)	63155	4207	6,6	0,01
2103,4	SE (^{208}Tl)	69438	21632	3,2	0,04
2118,5	^{214}Bi (^{238}U)	69438	2794	6,5	0,01
2204,2	^{214}Bi (^{238}U)	42215	10044	4,2	0,02
2293,4	^{214}Bi (^{238}U)	24696	3014	7,3	0,01
2447,9	^{214}Bi (^{238}U)	38646	3768	8,7	0,01
2614,5	^{208}Tl (^{232}Th)	200565	188774	1,2	0,36

Das passive Untergrundspektrum weist hauptsächlich verzögerte Gamma-Linien von Tochternukliden der primordialen Isotope ^{238}U, ^{235}U, sowie ^{232}Th auf. Zusätzlich wurden das natürlich vorkommende Isotop ^{40}K und die künstlichen Radionuklide ^{60}Co, ^{152}Eu, ^{154}Eu identifiziert. Die nachgewiesenen künstlichen Radionuklide resultieren aus einer Aktivierung mit Neutronen oder sind Spaltprodukte. Die Kontamination metallischer Bauteile und Stahlsorten mit ^{60}Co ist ein weit verbreiteter Zustand, der aus dem Recycling von teils mit ^{60}Co kontaminiertem Stahl oder Metall resultiert. Bei den Isotopen ^{152}Eu und ^{154}Eu handelt es sich um langlebige Radionuklide mit einer Halbwertszeit von 13,33 bzw. 8,8 Jahren. Für eine Entstehung der Isotope durch Neutronen-Aktivierung wäre eine sehr lange Bestrahlungszeit erforderlich, die zum Zeitpunkt der Aufnahme des Spektrums nicht stattgefunden hatte. Die nachgewiesenen Isotope des Europiums resultieren somit entweder aus einer geringfügigen Kontamination des Targetraums aus länger zurückliegenden Experimenten oder einer Kontamination des zum Bau der Bestrahlungskammer verwendeten Graphits. Das aufgenommene Untergrundspektrum stimmt bis auf die beschriebenen Besonderheiten mit anderen veröffentlichen Untergrundspektren /7-4/7-5/ überein.

7.4 Aktives Untergrundspektrum

Als aktives Untergrundspektrum wird das registrierte Gamma-Spektrum bezeichnet, das aus der Neutronen-Aktivierung der Anlagenkomponenten der MEDINA-Bestrahlungseinrichtung resultiert. Die Messung des aktiven Untergrundspektrums erfolgte demnach ohne Probe und beim gepulsten Betrieb des Neutronengenerators unter Standardbestrahlungs- und Messparametern (siehe Kap. 5.9). Das aktive Untergrundspektrum wurde über eine Messzeit von 2000 s im ZDT-Mode aufgenommen und anschließend mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet. Die Totzeit des Spektrometers bei dieser aktiven Untergrundmessung betrug 15,5 % der Akquisitionszeit.

Die im aktiven Untergrundspektrum nachgewiesenen prompten und verzögerten Gamma-Quanten und die zugeordneten Isotope sind in Tab. 7.5 aufgelistet. Allein das Untergrundspektrum der MEDINA-Testeinrichtung weist über 130 Gamma-Linien auf. Es konnten folgende Elemente identifiziert werden: Wasserstoff (H), Bor (B), Kohlenstoff (C), Stickstoff (N), Magnesium (Mg), Aluminium (Al), Silizium (Si), Schwefel (S), Chlor (Cl), Kalzium (Ca), Titan (Ti), Eisen (Fe), Nickel (Ni), Germanium (Ge), Indium (In), Samarium (Sm) und Gadolinium (Gd).

Ein beispielhafter Ausschnitt des aktiven Untergrundspektrums im Energiebereich von 2000 keV bis 5000 keV ist in Abb. 7.9 gezeigt. In dem dargestellten Energiebereich befinden sich die Gamma-Peaks mit den größten Nettopeakflächen von Kohlenstoff und Wasserstoff sowie der jeweiligen Single-Escape-Peaks (SE) und Douple-Escape-Peaks (DE).

Tab. 7.5: *Nachgewiesene Gamma-Linien und zugeordnete Isotope im aktiven Untergrundspektrum.*

γ-Energie [keV]	**Isotop**	**Brutto-Fläche**	**Netto-Peakfläche**	**Netto-Zählrate [s^{-1}]**	**Fehler [%]**	**Herkunft/ Bemerkung**
53,4	^{73m}Ge	3802808	332462	178.74	10,8	verzögert
66,0	^{75m}Ge+^{73m}Ge	3712240	214217	115.17	7,3	verzögert
139,8	^{75m}Ge	2333057	269905	145.11	5,9	verzögert
181,9	^{157}Gd	617717	12120	6.52	22,4	prompt
198,6	^{75m}Ge	1192086	244715	131.57	4,4	verzögert
333,9	^{149}Sm	1158138	20107	10.81	6,7	prompt
352,3	^{56}Fe	1158138	5614	3.02	14,5	Prompt
439,4	^{149}Sm	274814	12540	6.74	6,9	verzögert
472,2	^{24m}Na	480320	30152	16.21	6,6	^{27}Al(n,α)^{24m}Na
477,6	^{10}B	480320	81688	43.92	13,8	^{10}B(n,α)^{7}Li
511,1	Annihilation	603902	152501	81.99	3,2	Annihilation
517,1	^{35}Cl	603902	39308	21.13	6,1	prompt
583,7	^{149}Sm	385066	2688	1.45	19,0	prompt
595,8	^{73}Ge	385066	11076	5.95	6,9	prompt
737,4	^{149}Sm	136194	1390	0.75	22,0	prompt
786,3	^{35}Cl	137454	32994	17.74	4,3	prompt
834,8	^{54}Mn	195680	2189	1.18	18,0	verzögert ^{54}Fe(n,p)^{54}Mn
843,7	^{27}Mg+^{56}Mn	147997	9058	4,87	9,2	prompt ^{26}Mg(n,γ)^{27}Mg verzögert ^{56}Fe(n,p)^{56}Mn ^{27}Al(n,p)^{27}Mg
869,2	^{157}Gd+^{73}Ge	122735	3167	1.70	15,8	prompt
897,5	^{157}Gd	361093	3979	2.14	13,0	prompt
937,5	^{35}Cl	361093	1180	0.63	23,9	prompt
944,2	^{157}Gd	361093	4968	2.67	14,8	prompt
962,1	^{157}Gd	384155	3324	1.79	18,7	prompt
977,2	^{157}Gd	384155	2131	1.15	20,6	prompt
1014,4	^{27}Mg	384155	3134	1,68	20,0	prompt ^{26}Mg(n,γ)^{27}Mg verzögert ^{27}Al(n,p)^{27}Mg
1097,3	^{116m}In	279488	2644	1.42	14,8	verzögert
1107,6	^{157}Gd	279488	3138	1.69	14,3	prompt
1119,2	^{157}Gd	279488	2083	1.12	16,5	prompt
1131,2	^{35}Cl	279488	2280	1.23	15,3	prompt
1164,9	^{35}Cl	284562	32796	17.63	4,4	prompt
1170,9	^{35}Cl	284562	2031	1.09	16,4	prompt
1186,0	^{157}Gd	284562	6804	3.66	7,0	prompt
1201,0	DE (^{1}H)	284562	4760	2.56	11,8	prompt
1261,8	^{12}C+^{56}Fe	171552	67436	36.26	2,5	prompt
1268,0	SE (^{28}Al)	202939	1803	0.97	12,7	prompt

Tab. 7.5, Fortsetzung: *Nachgewiesene Gamma-Linien und zugeordnete Isotope im aktiven Untergrundspektrum.*

γ-Energie [keV]	**Isotop**	**Brutto-Fläche**	**Netto-Peakfläche**	**Netto-Zählrate [s^{-1}]**	**Fehler [%]**	**Herkunft/ Bemerkung**
1273,4	^{28}Si	202939	1388	0.75	16,7	prompt
1327,4	^{35}Cl	92996	3442	1.85	19,7	prompt
1381,7	^{48}Ti	78937	2486	1.34	12,6	prompt
1434,1	^{51}V	175105	2319	1.25	19,0	verzögert
1462,5	^{35}Cl	175105	2701	1.45	12,5	prompt
1601,0	^{35}Cl	111398	3757	2.02	12,8	prompt
1612,8	^{56}Fe	111398	1547	0.83	17,9	prompt
1678,3	^{14}N	80335	1794	0.96	26,0	prompt
1712,2	SE (^{1}H)	113540	10353	5.57	7,6	prompt
1725,3	^{56}Fe	113540	2479	1.33	16,2	prompt
1778,9	^{28}Al	93715	11225	6.03	6,7	verzögert ^{28}Si(n,p)^{28}Al ^{27}Al(n,γ)^{28}Al
1884,8	^{14}N	64900	3137	1.69	10,3	prompt
1942,6	^{40}Ca	237980	4809	2.59	7,8	prompt
1951,1	^{35}Cl	237980	18989	10.21	3,0	prompt
1959,3	^{35}Cl	237980	12515	6.73	3,3	prompt
2092.9	^{28}Si	57428	1390	0.75	21,0	prompt
2223,2	^{1}H	224828	169567	91.17	0,8	prompt
2311,4	^{35}Cl	25171	1344	0.72	17,7	prompt
2379,6	^{32}S	27714	930	0.50	17,6	prompt
2661,9	DE (^{12}C)	85550	5424	2.92	8,5	prompt
2675,3	^{35}Cl	85550	1680	0.90	14,3	prompt
2754,1	^{24}Na	36252	752	0.40	29,3	verzögert
2863,8	^{35}Cl	85394	4644	2.50	11,6	prompt
2975,2	^{35}Cl	215123	992	0.53	27,4	prompt
2994,5	^{35}Cl	215123	927	0.50	22,3	prompt
3027,6	SE (^{28}Si)	215123	1254	0.67	18,2	prompt
3061,8	^{35}Cl	215123	2422	1.30	13,2	prompt
3172,9	SE (^{12}C)	53265	13125	7.06	4,4	prompt
3538,9	^{28}Si	44605	5091	2.74	5,4	prompt
3677,7	^{14}N	105908	2163	1.16	7,3	prompt
3683,9	^{12}C	105908	48178	25.90	1,7	prompt
3907,5	SE (^{40}Ca)	58765	1092	0.59	12,6	prompt
3923,3	DE (^{12}C)	58765	15303	8.23	3,1	prompt
4218,3	^{56}Fe	37729	1384	0.74	24,8	prompt
4418,5	^{40}Ca	136346	4034	2.17	4,4	prompt
4434,3	SE (^{12}C)	136346	44945	24.16	2,7	prompt
4466,8	SE (^{35}Cl)	16058	584	0.31	29,1	prompt
4508,6	^{14}N	32112	1090	0.59	24,3	prompt
4758,9	SE (^{14}N)	21402	1294	0.70	16,3	prompt
4788,0	SE (^{14}N)	22963	731	0.39	25,8	prompt
4933,8	^{28}Si	143384	9786	5.26	2,9	prompt

Tab. 7.5, Fortsetzung: *Nachgewiesene Gamma-Linien und zugeordnete Isotope im aktiven Untergrundspektrum.*

γ-Energie [keV]	Isotop	Brutto-Fläche	Netto-Peakfläche	Netto-Zählrate [s^{-1}]	Fehler [%]	Herkunft/ Bemerkung
4945,3	^{12}C	143384	88514	47.59	1,2	prompt
4979,8	^{35}Cl	11590	1394	0.75	13,2	prompt
5088,8	DE(^{35}Cl)	26166	2201	1.18	8,1	prompt
5106,9	DE(^{16}N)	26166	923	0.50	15,2	prompt
5206,3	SE(^{35}Cl)	54323	1676	0.90	11,8	prompt
5269,1	^{14}N	54323	1828	0.98	11,9	prompt
5297,8	^{14}N	5296	1385	0.74	14,3	prompt
5398,8	DE(^{40}Ca + ^{48}Ti)	112651	1192	0.64	15,3	prompt
5409,4	SE (^{56}Fe)	112651	1541	0.83	11,9	prompt
5420,6	^{32}S	112651	889	0.48	17,5	prompt
5507,5	SE (^{56}Fe)	112651	1141	0.61	15,8	prompt
5517,3	^{35}Cl	112651	866	0.47	19,7	prompt
5533,4	^{14}N	112651	748	0.40	19,9	prompt
5599,8	SE (^{35}Cl)	112651	6715	3.61	6,3	prompt
5617,6	SE (^{16}N)	112651	1292	0.69	12,5	prompt
5715,2	^{35}Cl	20568	1857	1.00	8,3	prompt
5907,5	SE (^{40}Ca+^{48}Ti)	56023	2199	1.18	11,6	prompt
5920,4	^{56}Fe	56023	2227	1.20	10,2	prompt
6018,5	^{56}Fe	56023	1528	0.82	12,9	prompt
6110,8	SE (^{35}Cl) + ^{35}Cl	46504	11537	6.20	2,7	prompt
6128,6	^{16}N	46504	2166	1.16	7,0	verzögert ^{16}O(n,p)^{16}N
6249,8	SE (^{48}Ti)	56440	885	0.48	15,0	prompt
6322,5	^{14}N	15985	923	0.50	13,5	prompt
6379,8	^{28}Si	24991	891	0.48	14,4	prompt
6392,6	DE (^{35}Cl)	24991	984	0.53	14,6	prompt
6418,5	^{40}Ca+ ^{48}Ti	24991	2149	1.16	9,0	prompt
6465,8	SE (^{35}Cl)	15249	599	0.32	21,5	prompt
6609,7	DE (^{56}Fe)	26875	1360	0.73	13,1	prompt
6621,7	^{35}Cl + DE (^{56}Fe)	26875	5959	3.20	5,3	prompt
6750,1	^{157}Gd	21724	798	0.43	17,6	prompt
6769,9	DE (^{35}Cl)	21724	1376	0.74	12,8	prompt
6902,9	SE (^{35}Cl)	16983	3365	1.81	5,4	prompt
6977,8	^{35}Cl	13185	1203	0.65	13,7	prompt
7120,2	SE (^{56}Fe)	19285	3996	2.15	4,4	prompt
7134,6	SE (^{56}Fe)	19285	3540	1.90	5,3	prompt
7214,7	SE (^{27}Al)	11995	982	0.53	13,1	prompt
7278,8	SE (^{35}Cl)+^{56}Fe	25375	2979	1.60	6,0	prompt
7413,9	^{35}Cl	14401	3854	2.07	4,4	prompt
7631,2	^{56}Fe	22155	4278	2.30	5,6	prompt
7645,6	^{56}Fe	22155	3173	1.71	7,7	prompt
7724,0	^{27}Al	4993	714	0.38	11,0	prompt
7790,3	^{35}Cl	6162	2129	1.14	6,4	prompt
8067,6	SE (^{35}Cl)	6409	779	0.42	12,8	prompt

Tab. 7.5, Fortsetzung: *Nachgewiesene Gamma-Linien und zugeordnete Isotope im aktiven Untergrundspektrum.*

γ-Energie [keV]	**Isotop**	**Brutto-Fläche**	**Netto-Peakfläche**	**Netto-Zählrate [s^{-1}]**	**Fehler [%]**	**Herkunft/ Bemerkung**
8487,4	SE (^{58}Ni)	8426	930	0.50	9,3	prompt
8533,7	^{58}Ni	8426	357	0.19	15,9	prompt
8578,6	^{35}Cl	8426	859	0.46	9,2	prompt
8786,7	SE (^{54}Fe)	5114	462	0.25	15,4	prompt
8998,4	^{58}Ni	1823	668	0.36	10,5	prompt
9297,7	^{54}Fe	1507	349	0.19	13,5	prompt

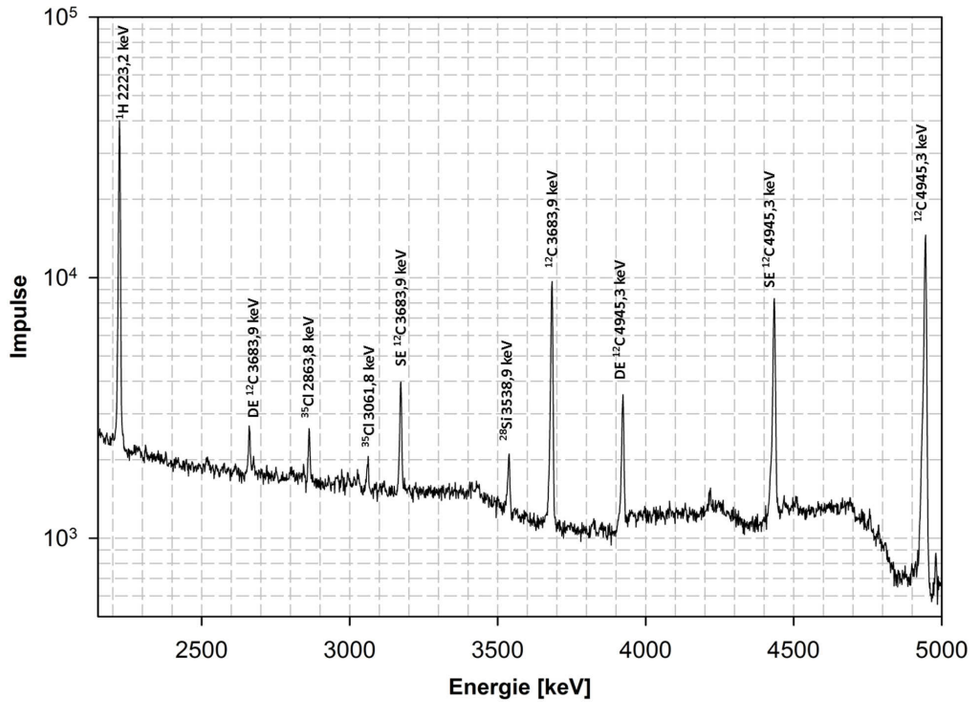


Abb. 7.9: *Ausschnitt aus dem aktiven Untergrundspektrum der MEDINA-Bestrahlungseinrichtung im Energiebereich von 2000 keV bis 5000 keV.*

Die detektierten prompten und verzögerten Gamma-Quanten entstehen bei der Neutronen-Aktivierung der Elemente, aus denen die MEDINA-Bestrahlungseinrichtung besteht bzw. die sich in ihrer Umgebung befinden. In Tab. 7.6 werden die im Untergrundspektrum identifizierten Elemente der jeweiligen Herkunft innerhalb der MEDINA-Bestrahlungseinrichtung zugeordnet. Gemäß dieser Zuordnung können die Baugruppen bzw. die Umgebung gemäß ihrem Effekt auf das Untergrundspektrum klassifiziert und bewertet werden. Eine Komponente der MEDINA-Bestrahlungseinrichtung, die eine hohe Ereignisrate im

Untergrundspektrum verursacht, ist bzgl. geringer Nachweisgrenzen im Messverfahren nachteilig und kann somit identifiziert und ggf. ausgetauscht oder optimiert werden. Die quantitative Elementzusammensetzung einzelner MEDINA-Baugruppen befindet sich in Kapitel 5.

Tab. 7.6: *Qualitative Elementzusammensetzung der Komponenten und der Umgebung der MEDINA-Bestrahlungseinrichtung.*

Graphit	CFK	Neutronen-generator	Fass-drehteller	Detektor & Stickstoffkühlung	Detektor-abschirmung	Beton-boden
H	H	Fe	Fe	Ge	Al	Si
B	B	Ni	Sm	N	Cl	H
C	C	Al	Gd	Al	Li	Ca
Al	N	Co	In			Mg
S	Cl	Ti	Mn			
Cl		H	H			
Ca		Na				
Ti		Mn				
V		Mg				
Fe						
Sm						
Gd						

Den größten Einfluss auf das Untergrundspektrum hat die Aktivierung des Kohlenstoffs aus dem die Bestrahlungskammer besteht. Obwohl der makroskopische Wirkungsquerschnitt für einen thermischen Neutroneneinfang mit quasi simultaner Prompt-Gamma-Emission bei Graphit noch verhältnismäßig gering im Vergleich zu anderen Moderatormaterialien ist, verursacht die erhebliche Graphitmasse die hohe Zählraten im Untergrundspektrum. Die Absorption der hochenergetischen Prompt-Gamma-Quanten des ^{12}C im Detektor mit einer Energie von 1261,8 keV, 3683,9 keV und 4945,3 keV sind primär für den erhöhten Comptonuntergrund verantwortlich (siehe Tab. 7.5 und Abb. 7.9). Den größten partiellen Wirkungsquerschnitt von 0,00261 b hat ^{12}C bei der Prompt-Gamma-Emission von 4945,3 keV. Dieser Wirkungsquerschnitt ist jedoch um den Faktor 127 kleiner als der von Wasserstoff mit 0,3326 b bei einer Energie von 2223,2 keV (siehe Abb. 7.9). Obwohl wasserstoffhaltige Materialien bei Bau der MEDINA-Bestrahlungseinrichtung vermieden wurden, wird im aktiven Untergrundspektrum durch die Aktivierung von Wasserstoff die höchste Zählrate mit 78,85 s^{-1} registriert. Nahezu sämtliche Komponenten der Bestrahlungseinrichtung enthalten Wasserstoff in geringen Konzentrationen. Sei es homogen verteilt im Betonboden, dem Graphit, oder räumlich konzentriert in Kunststoffisolierungen. Wasserstoff ist in jedem elektronischen Bauteil der MEDINA-Bestrahlungskammer enthalten, z. B. in Kabeln oder elektrischen Platinen. Wasserstoff ist in höheren Konzentrationen nur in den CFK-Komponenten enthalten. Diese sind die Deckenkonstruktion, ein tragender Balken und der Fassdrehteller. Besonders die Aktivierung des CFK-Stützbalkens wird aufgrund der Nähe zum Detektor einen großen Anteil an der registrierten Wasserstoffzählrate haben. Die konservative Auslegung bzgl. der Wandstärken der CFK-Komponenten birgt Optimierungspotenzial zur Reduktion des Wasserstoffanteils innerhalb der Bestrahlungseinrichtung. Die CFK-Komponenten enthalten weiterhin die Elemente Kohlenstoff (C), Stickstoff (N), Wasserstoff (H), Bor (B) und Chlor (Cl). Eine genaue Analyse der Elementzusammensetzung des CFK ist in Tab. 5.8

ersichtlich. Sämtliche Elemente konnten im Spektrum detektiert werden, sind jedoch auch in anderen Bauteilen der MEDINA-Bestrahlungseinrichtung als Quellterm auffindbar.

Der Graphit der Bestrahlungskammer weist Spurenverunreinigungen der Elemente Al, Ba, Ca, Fe, Mg, Ni, S, Si, Sr und B auf (siehe Tab. 5.2 und 5.3). Resultierend aus der Graphitmasse der Bestrahlungskammer summieren sich diese Verunreinigungen z. B. zu einer Schwefelmasse von 2,21 kg und einer Siliziummasse von 2,6 kg auf. Während die im aktiven Untergrundspektrum nachgewiesene Prompt-Gamma-Emission des Elements Silizium aus der Aktivierung der Spurenverunreinigung im Graphit sowie aus der Aktivierung des Betonbodens, auf dem die Bestrahlungskammer aufgebaut wurde, herrühren können, lässt sich für das Element Schwefel auf keinen anderen Ursprung als die Spurenverunreinigung des Graphits schließen. Für die Aktivierung des Elements Schwefel wird bei einer Gamma-Linie mit der Energie von 2379,6 keV ($\sigma_{E_\gamma} = 0{,}208$ b) eine Zählrate von 0,43 s^{-1} gemessen. Das Element Bor ist ebenfalls im Graphit und in den CFK-Komponenten als Spurenverunreinigung enthalten. Für die Neutronen-Aktivierung des Bors, induziert durch thermische Neutronen, wird für die Kernreaktion $^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$ mittels der Gamma-Quanten mit einer Energie von 477,6 keV eine Zählrate von 20,92 s^{-1} registriert.

Die im Spektrum detektierten Chlor-Peaks rühren neben der Aktivierung der CFK-Komponenten auch von der Aktivierung der um den Detektor befindlichen ^{6}Li-Abschirmung. Eine Probenanalyse des ^{6}LiF-Materials mit einem Rasterelektronenmikroskop (EDX) zeigte Verunreinigung der Abschirmung mit Chlor /1-5/. Der große Neutroneneinfangquerschnitt des Elements Chlor ($\sigma_{E_\gamma} = 33{,}1$ b) in Verbindung mit der geringen Entfernung zum Detektorkristall und damit einhergehenden großen Effizienz bei einer Aktivierung führt zu hohen Zählraten der Gamma-Linien des Chlors im Untergrundspektrum.

Im aktiven Untergrundspektrum werden, induziert durch eine Neutronen-Aktivierung, nur die hochenergetischen Prompt-Gamma-Quanten von Eisen registriert. Hieraus erschließt sich, dass die Gamma-Emission des Eisens nicht durch eine Aktivierung der Spurenverunreinigungen im Graphit herrühren, sondern von Komponenten der Bestrahlungskammer emittiert werden, die sich hinter abschirmenden Strukturen befinden. Die Eisenmasse, die hierfür primär in Betracht kommen, ist der metallische Rundschalttisch auf dem Boden der Bestrahlungskammer. Dieser wird nach oben hin von dem 6 cm starken CFK Fassdrehteller abgeschirmt.

Die im Untergrundspektrum gemessenen verzögerten Gamma-Emissionen des Mangans mit einer Energie von 834,5 keV und 843,7 keV resultieren aus einer Kernreaktion mit schnellen Neutronen des Elements Eisen. Die Bestrahlung von ^{54}Fe und ^{56}Fe mit schnellen Neuronen führte zu (n,p)-Kernreaktion und somit zu den genannten verzögerten Gamma-Emissionen der Manganisotope ^{54}Mn und ^{56}Mn. Mangan ist ein Legierungsbestandteil der Edelstahlumhüllung des Neutronengenerators. Die Edelstahlumhüllung ist nur wenige Zentimeter von der Neutronenquelle entfernt. Die MCNP-Simulationen zeigen (siehe Kap. 5.10),

dass die Edelstahlumhüllung des Neutronengenerators die metallische Anlagenkomponente ist, die den höchsten schnellen und thermischen Neutronenflüssen ausgesetzt ist.

Im aktiven Untergrundspektrum der leeren MEDINA Bestrahlungskammer konnten zahlreiche Gamma-Linien von zwei Metallen der Seltenen Erden nachgewiesen werden. Es handelt sich um die Elemente Samarium und Gadolinium. Diese Elemente sind Legierungsbestandteile des Magneten, der sich im Elektromotor des eingebauten Fassdrehtellers befindet. Die partiellen Wirkungsquerschnitte sind bei den Elementen der Seltenen Erden besonders groß. Den größten partiellen Wirkungsquerschnitt von 7200 b hat ^{157}Gd bei der Prompt-Gamma-Emission von 181,9 keV. Hier zeigt das Spektrum ebenfalls die größte Nettopeak-Fläche für die Aktivierung des Gadoliniums. Es wird eine Zählrate von 5,57 s^{-1} registriert. Samarium emittiert bei einer Neutronen-Aktivierung Photonen bei einer Energie von 333,9 keV mit einem partiellen Wirkungsquerschnitt von 4790 b. Dies führt bei der genannten Energie zu einer Zählrate von 9,35 s^{-1}.

Der Fassdrehteller und die Bestrahlungskammer sind auf einem Boden aus Schwerbeton aufgebaut. Der Beton besteht primär aus den Elementen Sauerstoff, Silizium, Calcium, Magnesium und Wasserstoff. Den größten partiellen Wirkungsquerschnitt für einen thermischen Neutroneneinfang von 0,119 b hat ^{28}Si bei der Gamma-Emission von 3538,9 keV. Bei dieser Energie wird ebenfalls die höchste interferenzfreie Zählrate einer Gamma-Linie des Siliziums mit 2,37 s^{-1} gemessen. Die Analyse des aktiven Untergrundspektrums zeigt, dass der Schwerbetonboden nur einen geringen Effekt auf das aktive Untergrundspektrum hat.

Im aktiven Untergrundspektrum konnte das Element Titan nachgewiesen werden. Am Ort der Fusionsreaktion ist der schnelle Neutronenfluss am größten. Die Einbettung des Neutronengenerators in Graphit führt zusätzlich zu einem großen thermischen Neutronenfluss innerhalb des Neutronengenerators, sodass auch das Titantarget stark aktiviert wird. Den größten partiellen Wirkungsquerschnitt von 5,18 b hat ^{48}Ti bei der Prompt-Gamma-Emission von 1381,7 keV. Hier wird im aktiven Untergrundspektrum eine Zählrate von 1,15 s^{-1} registriert. Der Graphit der Bestrahlungskammer enthält ebenfalls Verunreinigungen von Titan, die eine Quelle für die Aktivierung sind.

Den HPGe-Detektor umgibt eine ^{6}Li-Abschirmung, welche zum Schutz mit einer Aluminiumfolie umgeben ist. Diese Aluminiumfolie wird durch die Neutronenbestrahlung aktiviert. Den größten partiellen Wirkungsquerschnitt für einen thermischen Neutroneneinfang von 0,232 b hat ^{28}Al ($T_{1/2}$ = 2,245 min) bei der verzögerten Gamma-Emission von 1778,9 keV. Diese Gamma-Emission entsteht einerseits durch einen thermischen Neutroneneinfang (^{27}Al(n,γ)^{28}Al) sowie durch eine (n,p)-Kernreaktion mit schnellen Neutronen am Silizium (^{28}Si(n,p)^{28}Al). Aufgrund der kurzen Halbwertszeit des ^{28}Al wird bereits während des Betriebs des Neutronengenerators und des durch die Prompt-Gamma-Strahlung bedingten hohen aktiven Untergrunds eine Aktivität des Zerfallsprodukts ^{28}Al detektiert.

Der flüssige Stickstoff im Dewargefäß zur Kühlung des Detektors sowie in den CFK-Komponenten wird ebenfalls aktiviert. Im aktiven Untergrundspektrum wird durch die Aktivierung des Stickstoffs die höchste Zählrate von 1,46 s^{-1} bei einer Energie von 1884,8 keV registriert ($\sigma_{E_\gamma} = 0{,}017$ b).

Die im Spektrum detektierten Gamma-Linien des Germaniums rühren aus einer Aktivierung des Detektorkristalls mit thermischen und schnellen Neutronen. Die um den Detektor befindliche Abschirmung bestehend aus ^{6}LiF-Platten sollte dazu dienen, sämtliche thermischen Neutronen durch die Kernreaktion $^{6}Li(n,\alpha)^{3}H$ zu absorbieren. Das Element Germanium weist bei einer Energie von 595,9 keV den größten partiellen Wirkungsquerschnitt von 1,1 b für einen thermischen Neutroneneinfang auf. Die Zählrate bei dieser Gamma-Energie beträgt 5,15 s^{-1}. Dies ist ein Beleg dafür, dass die Neutronenabschirmung des Detektors nicht alle thermischen Neutronen absorbiert und thermische Neutronen anscheinend durch Lücken oder Brüche der empfindlichen Abschirmung diffundieren. Da die Funktionsfähigkeit der Abschirmung grundsätzlich belegt ist /1-5/, ist zukünftig besonders eine Optimierung bzgl. der Robustheit und der Abschirmung von schnellen Neutronen sowie der Gamma-Strahlung aus den nahen Graphitwandungen anstrebenswert. Denn die durch die Aktivierung des Germaniumkristalls registrierten höchsten Zählraten werden durch schnelle Neutronen verursacht. Im Spektrum zeigen sich die verzögerten Gamma-Quanten von ^{73m}Ge ($T_{1/2} = 0{,}489$ s, $E_\gamma = 53{,}3$ keV) und von ^{75m}Ge ($T_{1/2} = 47{,}7$ s, $E_\gamma = 66{,}0$ keV; 139,8 keV; 198,6 keV) registriert. Die Zählraten bei diesen Gamma-Energien betragen 154,5 s^{-1} (53,3 keV), 99,6 s^{-1} (66,0 keV), 125,5 s^{-1} (139,8 keV), 113,8 s^{-1} (198,6 keV).

7.5 Residualaktivität der Bestrahlungseinrichtung

Nach der Messung des aktiven Untergrunds wurde der Neutronengenerator abgeschaltet und Spektren der verzögerten Gamma-Emissionen der Bestrahlungseinrichtung über eine Messzeit von 600 s bzw. 3600 s im ZDT-Modus aufgenommen und anschließend mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet. Die nachgewiesenen Gamma-Quanten und zugeordneten Isotope sind in Tab. 7.7 und Tab. 7.8 aufgeführt. Die Spektren zeigen die durch die Neutronen-Aktivierung induzierte Residualaktivität einer Messung gemäß Standardbestrahlungsparametern.

Aus dem passiven Untergrundspektrum bereits bekannt und hier nur peripher relevant wurden die Isotope ^{208}Tl, ein Isotop der Thorium-Zerfallsreihe, sowie das natürlich vorhandene ^{40}K detektiert. Beachtenswert sind die durch die Neutronenbestrahlung aktivierten Isotope ^{24}Na ($T_{1/2} = 14{,}96$ h), ^{27}Mg ($T_{1/2} = 9{,}45$ m), ^{52}V ($T_{1/2} = 3{,}74$ h), ^{56}Mn ($T_{1/2} = 2{,}58$ h) und ^{116m}In ($T_{1/2} = 54{,}29$ m). Nach 10 Halbwertszeiten sind noch 1/1024 der radioaktiven Atomkerne vorhanden, weshalb dann quasi keine Radioaktivität registriert wird. Das in den Spektren detektierte künstliche Isotop mit der längsten Halbwertszeit ist ^{24}Na. Demnach kann nach einer Betriebspause von ca. einer Woche gamma-spektrometrisch keine Radioaktivität in der MEDINA-Bestrahlungskammer mehr festgestellt werden.

Tab. 7.7: *Nachgewiesene verzögerte Gamma-Quanten und zugeordnete Isotope bei einer Messzeit von 600 s nach Abschaltung des Neutronengenerators.*

γ-Energie [keV]	**Isotop**	**Brutto-Fläche**	**Netto-Peakfläche**	**Fehler [%]**	**Zählrate [s^{-1}]**
61,9	^{75m}Ge	59564	6995	22,0	11,66
139,7	^{75m}Ge	38621	12020	3,9	20,03
416,9	^{116m}In	5036	539	15,7	0,90
511,1	Annihilation	11400	1393	8,7	2,32
843,7	^{27}Mg+^{56}Mn	7772	3208	7,4	5,35
1014,4	^{27}Mg	3830	983	11,5	1,64
1097,3	^{116m}In	1414	589	6,7	0,98
1293,5	^{116m}In	2071	756	7,4	1,26
1434,1	^{52}V	565	168	20,8	0,28
1460,8	^{40}K	700	266	12,3	0,44
1778,9	^{28}Al	1678	1410	5,4	2,35
1810,7	^{56}Mn	389	170	12,5	0,28
2113,1	^{56}Mn	448	216	13,2	0,36
2614,5	^{208}Tl (^{232}Th)	296	201	7,3	0,34
2754,0	^{24}Na	206	126	9,3	0,21

Tab. 7.8: *Nachgewiesene verzögerte Gamma-Quanten und zugeordnete Isotope bei einer Messzeit von 3600 s nach Abschaltung des Neutronengenerators.*

γ-Energie [keV]	**Isotop**	**Brutto-Fläche**	**Netto-Peakfläche**	**Fehler [%]**	**Zählrate [s^{-1}]**
61,9	^{75m}Ge	166766	32819	27,6	9,12
139,7	^{75m}Ge	73496	12575	6,1	3,49
238,6	^{212}Pb (^{232}Th)	427704	1978	13,8	0,55
416,9	^{116m}In	26729	2148	13,6	0,60
511,1	Annihilation	30629	4941	10,1	1,37
583,4	^{208}Tl (^{232}Th)	18499	1191	17,1	0,33
843,7	^{27}Mg+^{56}Mn	20017	8072	6,2	2,24
1014,4	^{27}Mg	6238	1817	7,2	0,50
1097,3	^{116m}In	6410	2596	7,6	0,72
1173,0	^{60}Co	3169	348	24,3	0,10
1293,5	^{116m}In	5723	3460	4,5	0,96
1332,5	^{60}Co	1894	398	15,6	0,11
1368,6	^{24}Na	3020	1019	9,3	0,28
1460,8	^{40}K	3304	1392	5,2	0,39
1778,9	^{28}Al	5189	1427	8,1	0,40
1810,7	^{56}Mn	5189	781	8,5	0,22
2113,1	^{56}Mn	2400	913	6,3	0,25
2390,8	SP ^{116m}In (1097,3+1293,5)	807	361	10,2	0,10
2614,5	^{208}Tl (^{232}Th)	1551	1302	4,6	0,36
2754,0	^{24}Na	911	773	4,5	0,21

Selbst nach einem längeren kontinuierlichen Betrieb der Bestrahlungskammer ist bei vertretbaren Abklingzeiten bezogen auf das Messverfahren und die Strahlenschutzverordnung /2-12/ mit keiner problematischen Residualaktivität der Anlagenkomponenten zu rechnen. Elementspezifische Aktivierungsanalysen befinden sich in Kapitel 8.5. Da nach dem Abschalten des Neutronengenerators der Untergrund durch Abwesenheit der Prompt-Gamma-Quanten stark sinkt, werden in den Spektren gebildete Aktivierungsprodukte besser oder überhaupt erst detektiert, die vorher im aktiven Untergrundspektrum nicht oder mit einem höheren Untergrund nachgewiesen werden konnten. Es handelt sich um die Elemente Vanadium (^{52}V, $T_{1/2} = 3{,}74$ m) und Indium (^{116m}In, $T_{1/2} = 54{,}29$ m). Beide Elemente sind Legierungsbestandteile metallischer Werkstoffe.

7.6 Einfluss von radioaktivem Inventar

Bei einer MEDINA-Messung emittieren die in den Abfällen enthaltenen Radionuklide verzögerte Gamma-Quanten, die zusätzlich zu den durch die Neutronen-Aktivierung induzierten Gamma-Quanten im Spektrum registriert werden. Der radioaktive Inhalt eines Fasses könnte das Messverfahren beeinflussen und die Empfindlichkeit zum Elementnachweis beeinträchtigen. Um die Eigenaktivität eines Abfallfasses experimentell zu simulieren, wurden außerhalb der Bestrahlungskammer in einem Abstand von 10 cm zum Detektor Punktquellen positioniert. Hierfür wurden Quellen der Radionuklide ^{60}Co (430 kBq ± 13 kBq, 1.10.2010) und ^{137}Cs (393 kBq ± 12 kBq, 1.10.2010) verwendet. Die Radionuklide ^{60}Co und ^{137}Cs wurden selektiert, weil es sich um sogenannte Leitnuklide handelt, die in Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung mit hoher Aktivität vertreten sind.

Leitnuklide verfügen über ein chemisch ähnliches Reaktionsverhalten und/oder so hohe spezifische Zerfallsenergie, dass sie schwächer strahlende Radionuklide in ihrer Wirkung überdecken. Dadurch ruft deren rechnerische Vernachlässigung keine Fehler bei Strahlenschutzrechnungen hervor. Leitnuklide werden genutzt, um bei bekannter Vorgeschichte des Materials, in dem sich das oder die Leitnuklide befinden, die Menge an anderen Nukliden zu berechnen. Das Leitnuklid ^{60}Co wird genutzt, um die Vorgeschichte von Abfällen bzw. Komponenten durch Neutronen-Aktivierung zu berechnen.

Die Messung und Bestimmung der Aktivität des Leitnuklids ^{137}Cs wird verwendet, um den Anteil von Spaltprodukten in einem Abfallkontingent zu quantifizieren. Die Aktivitätsgrenzwert für die beiden Leitnuklide ^{60}Co und ^{137}Cs, die aus der Störfallanalyse für das Endlager Konrad abgeleitet wurden, betragen in Abhängigkeit der sicherheitstechnischen Qualität des Abfallprodukts, resultierend aus dem Freisetzungsverhalten von Radionukliden in einem Störfall, $5 \cdot 10^9$ bis $5 \cdot 10^{12}$ Bq pro Gebinde /1-1/. Ein Abfallgebinde kann jedoch bis zu 26 200-l-Fässer enthalten. Ein eindeutiger Grenzwert für ein 200-l-Fass besteht demnach nicht, da ein 200-l-Fass für die Schachtanlage Konrad keine endlagergerechte Verpackung ist.

Der Abstand der Punktquellen zum Detektor hin wurde so bestimmt, dass die durch die Punktquellen hervorgerufenen Ereignisse pro Sekunde im Detektor einer unabgeschirmten Punktquelle im Zentrum von

einem 200-l-Fass mit einer Aktivität von $4{,}3 \cdot 10^7$ Bq des Radionuklids ^{60}Co und $4{,}3 \cdot 10^7$ Bq des Radionuklids ^{137}Cs entsprechen. Da reale Abfallfässer die aus dem Inneren emittierte Strahlung abschirmen würden, wäre bei einer Aktivitätsverteilung in einer Abfallmatrix das Aktivitätsinventar größer als die genannten Aktivitäten im Fasszentrum. Die durch die Punktquellen simulierte Aktivität würde in dem Bereich der Aktivitätsgrenzwerte für die beiden Leitnuklide ^{60}Co und ^{137}Cs liegen und ist somit für eine Simulation der Eigenaktivität eines 200-l-Fasses, wie es für die Endlagerung in der Schachtanlage in Betracht kommen würde, plausibel. Mit den in der Nähe des Detektors positionierten Punktquellen wurden zwei Messungen gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern durchgeführt. Bei der ersten Messung war die Messkammer leer und bei der zweiten Messung wurde ein leeres 200-l-RRW-Fass auf dem Drehteller positioniert. Der untersuchte Fall eines leeren Fasses ist konservativ abdeckend, da ein zusätzlicher Inhalt des Fasses bei der Neutronen-Aktivierung nur die Emission von prompter und verzögerter Gamma-Strahlung erhöhen würde und somit den Einfluss der Eigenaktivität auf die Messung reduziert. Die im ZDT-Modus aufgenommenen Gamma-Spektren wurden mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet.

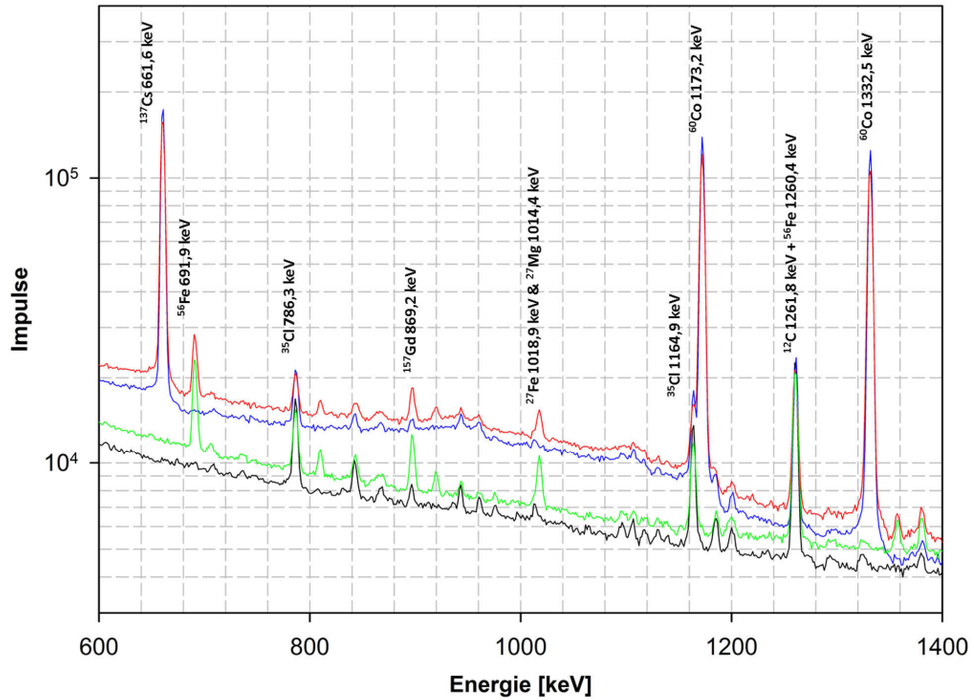


Abb. 7.10: *Vergleich zwischen dem aktiven Untergrundspektrum (schwarz), dem aktiven Untergrundspektrum inkl. der Radionuklide ^{60}Co und ^{137}Cs (blau), dem Spektrum eines 200-l-RRW-Fasses (grün) und dem Spektrum eines 200-l-RRW-Fasses inkl. der Radionuklide ^{60}Co und ^{137}Cs (rot) im Energiebereich von 600 - 1400 keV.*

Die registrierten Spektren des aktiven Untergrunds und eines leeren Fasses mit und ohne simulierte Eigenaktivität sind in Abb. 7.10 für einen Energiebereich von 600 keV bis 1400 keV und in Abb. 7.11 für einen Energiebereich von 1350 keV bis 2300 keV dargestellt. In dem dargestellten Energiebereich sind die beim Zerfall der Radionuklide ^{60}Co oder ^{137}Cs registrierten verzögerten Gamma-Quanten ersichtlich.

Für die Bewertung des Einflusses der Eigenaktivität eines 200-l-Fasses sind zwei Effekte zu berücksichtigen. Der erste Effekt ist, dass aus dem Abfall verzögert emittierte Photonen mit durch die Neutronen-Aktivierung induzierten Photonen interferieren können. In Abhängigkeit der Energieauflösung des Spektrometers können die Netto-Peakflächen von interferierenden Peaks ggf. nicht voneinander getrennt werden und sind somit für eine quantitative Analyse unbrauchbar. Problematisch wäre eine Analyse von durch die Neutronen-Aktivierung induzierten Gamma-Quanten, die in einem Energiebereich von weniger als 4 keV von der Gamma-Energie der Leitnuklide liegen. In Tab. 7.9 werden für die verwendeten Leitnuklide bespielhaft einige potentiell interferierende Gamma-Linien aufgeführt.

Tab. 7.9: *Mögliche Interferenzen von verzögerten Gamma-Quanten der Leitnuklide ^{60}Co und ^{137}Cs mit Gamma-Quanten aus der Aktivierungsanalyse.*

γ-Energie [keV]	**Isotop**	**Potentiell interferierende Isotope und γ-Energie**
661,66	^{137}Cs	^{130}Ce (661,99 keV)
1173,24	^{60}Co	^{177}Hf (1174,64 keV), ^{119}Sn (1171,28 keV)
1332,50	^{60}Co	^{67}Zn (1340,1 keV)

Wie die Tab. 7.9 zeigt, existieren zwar potentiell mit den Leitnukliden interferierende Gamma-Linien, jedoch sind diese interferierenden Gamma-Linien für eine qualitative Analyse der Elemente Cer (Ce), Hafnium (Hf), Zinn (Sn) und Zink (Zn) nicht relevant, da diese Elemente zahlreiche Prompt-Gamma-Quanten mit größeren partiellen Wirkungsquerschnitten besitzen.

Der zweite Effekt, den radioaktives Eigeninventar auf eine Messung ausübt, ist eine Erhöhung des Untergrunds über einen Teil des Spektrums. Primär findet diese Erhöhung unterhalb der Gamma-Energie der von den Radionukliden emittierten verzögerten Photonen durch Comptonstreuung im Detektor statt. Die hochenergetischste Gamma-Energie des radioaktiven Eigeneinventars stellt eine Grenzenergie für diesen Effekt dar. Geringfügig erhöht sich der Untergrund auch oberhalb dieser Gamma-Energien durch Summationseffekte im Detektor. Summationseffekte treten aufgrund echter Koinzidenzen, bedingt durch das Zerfallsschema von Radionukliden, oder falschen Koinzidenzen durch hohe Zählraten auf. Der Vergleich der Abb. 7.10 und Abb. 7.11 zeigt, dass Summationseffekte im Vergleich zu einer Comptonstreuung im Detektor deutlich seltener auftreten. Oberhalb der Gamma-Linien des ^{60}Co verringert sich der Einfluss der simulierten Eigenaktivität mit zunehmender Gamma-Energie. Um quantifizierbare Werte für den Einfluss der Eigenaktivität eines 200-l-Fasses wiederzugeben, führt die Tab. 7.10 die Untergrundzählrate für die in den Gamma-Spektren detektierten Prompt-Gamma-Peaks unterhalb der Grenzenergie (1332,5 keV) auf. Zusätzlich listet die Tabelle die Untergrundzählrate zweier Peaks auf, die oberhalb der Grenzenergie liegen.

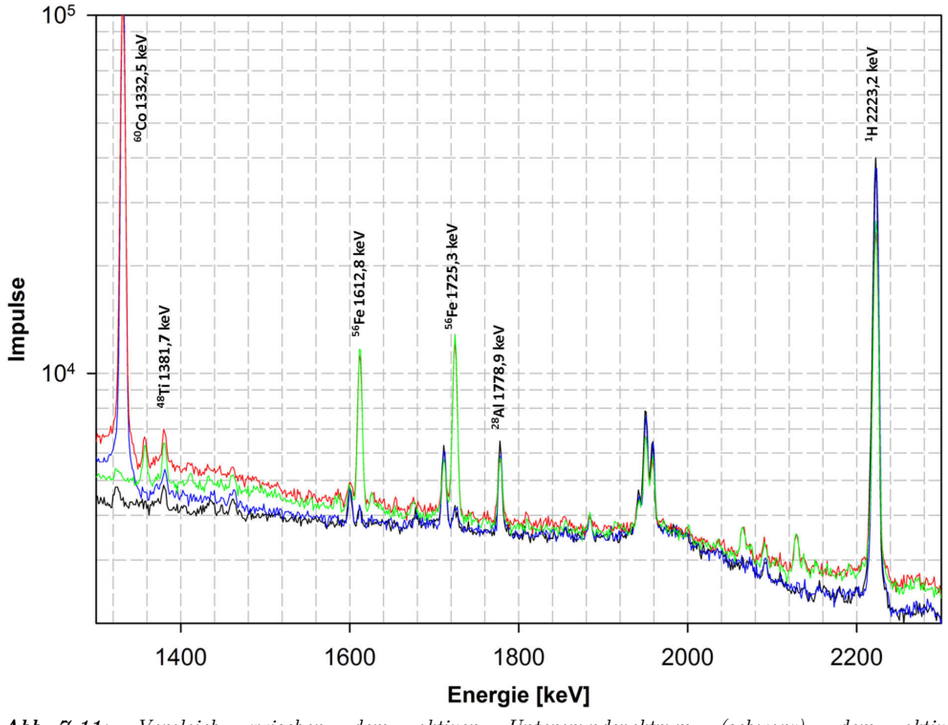


Abb. 7.11: *Vergleich zwischen dem aktiven Untergrundspektrum (schwarz), dem aktiven Untergrundspektrum inkl. der Punktquelle der Radionuklide ^{60}Co und ^{137}Cs (blaue), dem Spektrum eines 200-l-RRW-Fasses (grün) und dem Spektrum eines 200-l-RRW-Fasses inkl. der Punktquelle der Radionuklide ^{60}Co und ^{137}Cs (rot) im Energiebereich von 1350 - 2300 keV.*

Der integrale mittlere thermische Neutronenfluss wird bei dem MEDINA-Messverfahren über die Aktivierung des Eisens der Stahlumhüllung eines 200-l-Fasses bestimmt. Hierzu müssen zunächst die Netto-Peakflächen der Prompt-Gamma-Quanten des Eisens bestimmt werden, wonach anschließend unter Anwendung der Gl. 3.2 und der Berücksichtigung der Photopeak-Effizienz aus einem 200-l-Fass emittierten Gamma-Emissionen (siehe Abb. 7.4) der integrale mittlere thermische Neutronenfluss errechnet werden kann. Das genaue Verfahren wird in Kapitel 8.3 beschrieben. Die Eigenaktivität eines 200-l-Fasses erhöht die Untergrundfläche niederenergetischer Prompt-Gamma-Quanten, unter anderem auch die des Eisens. Anhand Tab. 7.10 ist erkennbar, dass bei den Prompt-Gamma-Quanten des Eisens mit einer Energie von 352,3 keV, 366,7 keV, 691,9 keV, 898,3 keV und 1018,9 keV die Eigenaktivität die Untergrundzählrate erhöht. Die Bestimmung des integralen mittleren thermischen Neutronenflusses in einem 200-l-Fass über die Stahlmantelhülle wird durch eine Eigenaktivität innerhalb des Fasses nur unterhalb der Grenzenergie beeinflusst. Eine Erhöhung der Untergrundzählrate hat zur Folge, dass die Messstatistik bei den Prompt-Gamma-Quanten des Eisens unterhalb der Grenzenergie schlechter wird. Resultierend steigt auch die Unsicherheit bei der Bestimmung des Neutronenflusses anhand dieser

Prompt-Gamma-Quanten des Eisens. Da durch ein radioaktives Eigeninventar die Messstatistik hochenergetischer Prompt-Gamma-Quanten des Eisens jedoch unbeeinflusst bleibt, ist der Effekt des Eigeninventars bzgl. der Bestimmung des Neutronenflusses unproblematisch.

Bei der Bestimmung der Nachweisgrenzen geht die Wurzel der Untergrundzählrate als Faktor in die Berechnung mit ein. Das Verfahren wird in Kap. 12 beschrieben. Aus den Ergebnissen der Tab. 7.10 ist ableitbar, dass der Einfluss der Eigenaktivität eines Abfallfasses zu einer Verschlechterung der Nachweisgrenzen von Elementen, die nur anhand von Gamma-Quanten unterhalb der Grenzenergie quantifiziert werden können, im Bereich von 1 % bis 7 % liegt. Eine solche Verschlechterung der Sensitivität des Messverfahrens ist tragbar. Die Effekte, die ein radioaktives Eigeninventar von 200-l-Fässern bei Messungen hat, können somit grundsätzlich als annehmbar gewertet werden.

Tab. 7.10: *Einfluss von simuliertem radioaktivem Eigeninventar eines Abfallfasses durch ^{60}Co & ^{137}Cs Punktquellen auf die Untergrundzählrate R bei einer Messung eines leeren 200-l-RRW-Fasses.*

γ-Energie [keV]	**Isotop**	**R_{Fass} [s^{-1}]**	**$R_{Fass\ mit\ Eigeninventar}$ [s^{-1}]**	**ΔR [%]**
333,9	^{149}Sm	223,1	246,1	10,3
352,3	^{56}Fe	262,3	318,9	21,6
366,7	^{56}Fe	175,9	233,6	32,8
691,9	^{56}Fe	110,5	159,5	44,3
786,3	^{35}Cl	121,5	155,8	28,2
898,3	^{56}Fe	73,2	99,6	36,1
1018,9	^{56}Fe	98,2	112,5	14,6
1164,9	^{35}Cl	88,4	88,4	0,1
1261,8	$^{12}C+^{56}Fe$	86,3	88,8	2,9
1381,7	^{48}Ti	35,3	40,0	13,3
1612,8	^{56}Fe	38,1	39,9	4,7

7.7 Lebensdauer der thermischen Neutronen

Die mittlere Lebensdauer der thermischen Neutronen L_m wurde durch Messungen der zeitabhängigen Zählraten der prompten Gamma-Strahlung nach zyklischen Neutronenpulsen bestimmt. Hierzu wurde ein 200-l-Fass mit der in Unterkapitel 5.1 beschriebenen Betonmatrix beladen, in die Bestrahlungskammer auf dem Drehteller positioniert und anhand der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse die zeitabhängigen Zählraten der prompten Gamma-Strahlung registriert.

Für die Messungen wurde die Beschleunigungsspannung des Neutronengenerators auf 75 kV bei einem Ionenstrom von 10 µA eingestellt. Die Neutronenpulsdauer wurde auf 250 µs und die Neutronenpulsperiode auf 5 ms (200 Hz) festgelegt. Insgesamt wurden acht Spektren mit unterschiedlicher Wartezeit nach einem Neutronenpuls im ZDT-Modus aufgenommen. Die Messzeit für die acht Spektren betrug jeweils 3000 s (real time) und die Akquisitionszeit zwischen den Neutronenpulsen wurde auf 500 µs festgelegt. Bei der ersten Spektrenaufnahme begann die Akquisitionszeit am Ende eines jeweiligen

Neutronenpulses ohne eine Wartezeit. Es mittelt somit die Gamma-Emissionen, die durch die Neutronen-Aktivierung in den ersten 500 µs nach Ende der Neutronenpulse detektiert werden. Weitere Messungen erfolgten nach einer Verschiebung der Wartezeit um n · 500 µs (n = 1 bis 7). Als Beispiel beginnt die zweite Spektrenaufnahme nach einer Wartezeit t_w von 500 µs und mittelt somit die Gamma-Emissionen in einem Zeitraum von 500 µs bis 1000 µs nach Ende der Neutronenpulse. In Abb. 7.12 werden die zeitabhängigen Gamma-Spektren dreidimensional dargestellt.

Die im ZDT-Mode aufgenommenen acht Gamma-Spektren wurden mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet. Für die Bestimmung der mittleren Lebensdauer der thermischen Neutronen in Teilen der Bestrahlungseinrichtung und dem 200-l-Fass mit Betonmatrix wurden die Netto-Peakfläche der Gamma-Linien der Isotope ^{56}Fe (352,3 keV), ^{10}B (477,6 keV), ^{56}Fe (691,9 keV), ^{35}Cl (1164,5 keV), ^{40}Ca (1942,6 keV), ^{1}H (2223,2 keV), ^{28}Si (3538,9 keV), ^{12}C (3683,9 keV), ^{12}C (4945,3 keV) bestimmt.

Als Beispiel ist die Zeitabhängigkeit der gemessenen Nettozählrate der prompten Gamma-Linie des Wasserstoffs bei einer Gamma-Energie von 2223,2 keV in Abb. 7.13 dargestellt.

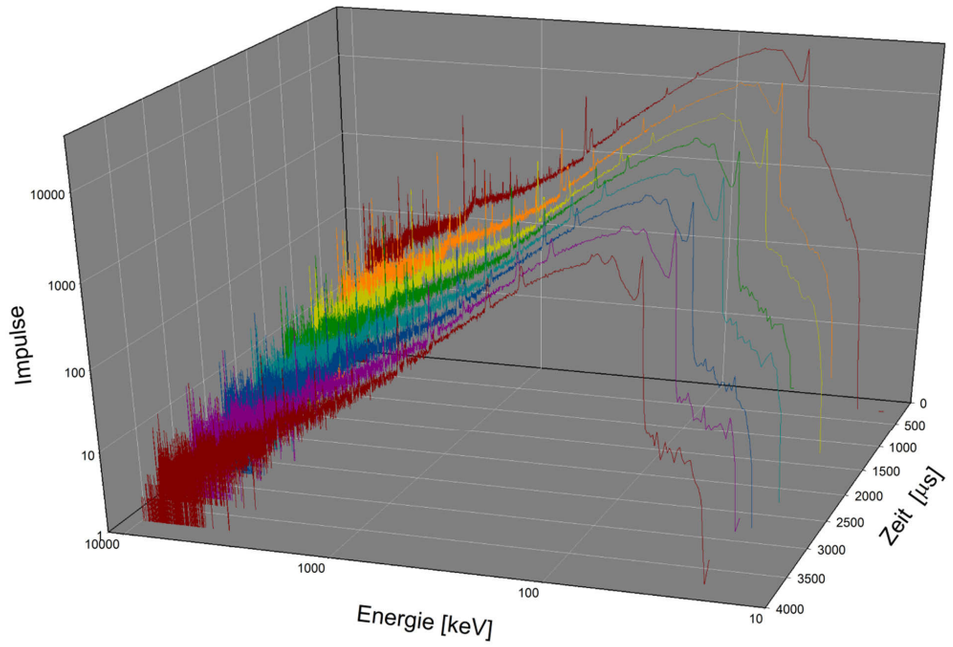


Abb. 7.12: *Zeitabhängige Gamma-Spektren durch Bestrahlung eines 200-l-RRW-Fasses mit Betonmatrix. Die Spektren wurden mit unterschiedlicher Wartezeit nach einem Neutronenpuls und einer Akquisitionszeit von 500 µs aufgenommen.*

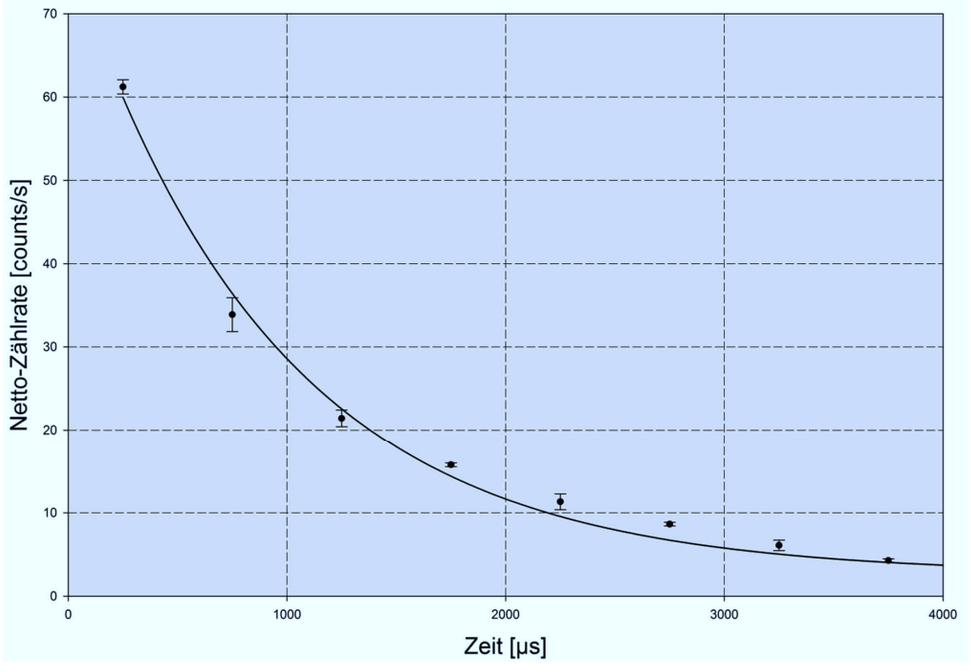


Abb. 7.13: *Zeitabhängige Prompt-Gamma-Emissionen des in der Betonmatrix und den Systemkomponenten enthaltenen Wasserstoffs bei 2223,2 keV.*

Die Netto-Photopeakflächen $P(t)$ der detektierten Gamma-Quanten nehmen exponentiell über die Zeit t gemäß folgender Gleichung ab:

$$P(t) = P_0 \cdot e^{-\frac{t}{L_m}} \tag{7.6}$$

Da die Photopeak-Effizienz konstant ist, ist die entsprechende Netto-Photopeakfläche direkt proportional mit dem mittleren thermischen Neutronenfluss. Der mittlere thermische Neutronenfluss $\phi_{th}(t)$ nach den Neutronenpulsen wird demnach analog über die Zeit t gemäß folgender Exponentialgleichung beschrieben:

$$\phi_{th}(t) = \phi_{th,0} \cdot e^{-\frac{t}{L_m}} \tag{7.7}$$

In Abb. 7.14 ist einer halblogarithmischen Darstellung die Netto-Zählrate der oben genannten Prompt-Gamma-Quanten als Funktion der Zeit abgebildet. Die Steigung der linearen Ausgleichsfunktionen der Netto-Zählraten entspricht der mittleren Lebensdauer der thermischen Neutronen L_m.

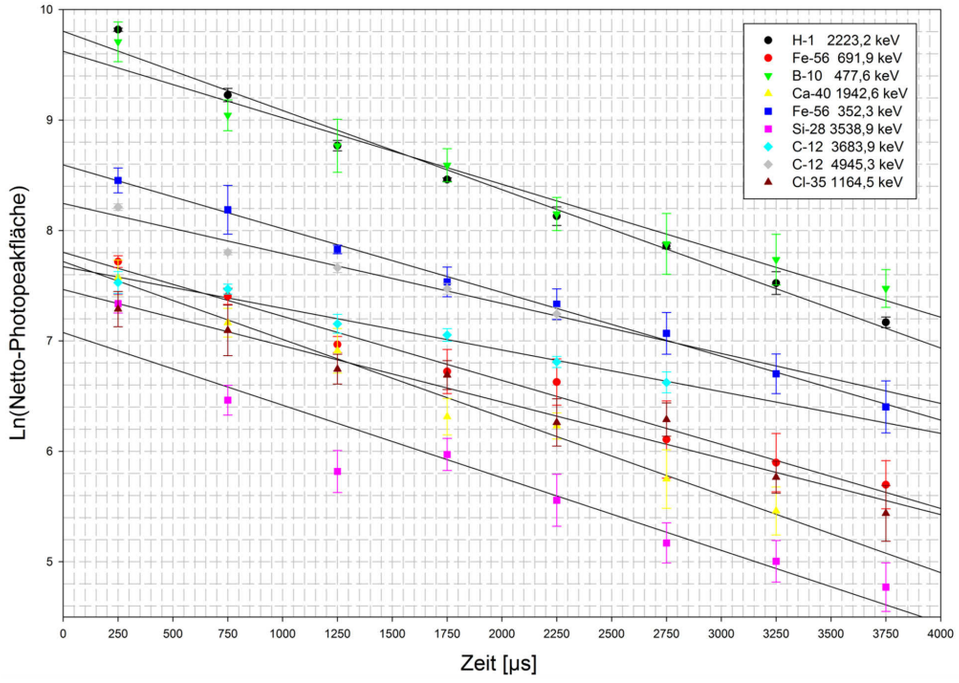


Abb. 7.13: *Netto-Photopeakflächen der gemessenen Prompt-Gamma-Quanten als Funktion der Zeit zur Bestimmung der mittleren und maximalen Lebensdauer der thermischen Neutronen innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer und der Betonmatrix.*

Der Schnittpunkt der linearen Ausgleichsfunktionen der gemessenen zeitabhängigen Netto-Photopeakflächen mit der Zeitachse gibt die maximalen Lebensdauern der Neutronen wieder. Die mittleren sowie die maximalen Lebensdauern in Abhängigkeit der jeweiligen Isotope sowie die Korrelationskoeffizienten R der Ausgleichsfunktionen sind in Tab. 7.11 gelistet.

Tab. 7.11: *Mittlere und maximale Lebensdauer der thermischen Neutronen innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer und einem 200-l-RRW-Fass mit einer Betonmatrix.*

γ-Energie [keV]	**Isotop**	**Mittlere Lebensdauer der thermischen Neutronen L_m [ms]**	**Max. Lebensdauer der thermischen Neutronen L [ms]**	**R^2**
352,3	^{56}Fe	1,73 ± 0,12	14,67 ± 0,13	0,9968
477,6	^{10}B	1,66 ± 0,08	15,99 ± 0,16	0,9869
691,9	^{56}Fe	1,72 ± 0,12	14,87 ± 0,17	0,9851
1164,5	^{35}Cl	1,96 ± 0,16	14,65 ± 0,19	0,9673
1942,6	^{40}Ca	1,42 ± 0,10	10,96 ± 0,15	0,9864
2223,2	^{1}H	1,39 ± 0,08	13,40 ± 0,08	0,9861
3538,9	^{28}Si	1,52 ± 0,10	10,76 ± 0,15	0,9135
3683,9	^{12}C	2,65 ± 0,45	20,32 ± 0,29	0,9796
4945,3	^{12}C	2,21 ± 0,41	18,20 ± 0,27	0,9660

Anhand des Verteilungsmusters der Isotope innerhalb der Bestrahlungskammer bzw. der Betonmatrix kann mittels des Nachweises der zeitabhängigen Zählraten auf das unterschiedliche Abklingverhalten des thermischen Neutronenflusses in einer jeweiligen Komponente bzw. auf eine Ortsabhängigkeit geschlossen werden. Die Emissionen der Prompt-Gamma-Strahlung aus Kohlenstoff beruht auf einer Aktivierung des Graphits, aus dem die Bestrahlungskammer besteht. Das Zeitverhalten dieser Nettozählrate spiegelt dementsprechend die mittlere Lebensdauer der thermischen Neutronen im Graphit wider. Aufgrund des niedrigen Absorptionsquerschnitts für thermische Neutronen ist die gemittelte maximale Lebensdauer der thermischen Neutronen im Graphit mit 19,26 ± 1,49 ms und einer mittleren Lebensdauer von 2,43 ± 0,31 ms innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer am höchsten.

Das Element Chlor befindet sich als Spurenverunreinigung im Graphit und in der Detektorabschirmung. In der Detektorabschirmung ist aufgrund des großen Wirkungsquerschnitts für einen Neutroneneinfang des ^{6}Li die mittlere Lebensdauer der Neutronen sehr klein. Graphit und Detektorabschirmung prägen somit das durch das Isotop ^{35}Cl nachgewiesene Abklingverhalten des thermischen Neutronenflusses mit einer mittleren Lebensdauer von 1,96 ± 0,16 ms.

Die Stahlumhüllung des 200-l-RRW-Fasses hat einen geringen Abstand zur Bestrahlungskammer, in der die Neutronen am längsten leben. Aus den Graphitwandungen zum Inneren der Bestrahlungskammer gestreute Neutronen würden deshalb mit hoher Wahrscheinlichkeit auf die Stahlumhüllung des Fasses treffen. Die mittlere Lebensdauer der thermischen Neutronen, abgleitet aus dem Zeitverhalten der Gamma-Emissionen des Isotops ^{56}Fe, spiegelt mit 1,72 ± 0,12 ms diese räumliche Nähe wider. Weiter entfernt von der Bestrahlungskammer sind die nachgewiesenen Elemente aus denen die Betonmatrix besteht. Die Netto-Zählraten der Isotope ^{28}Si und ^{40}Ca weisen mit 1,52 ± 0,10 ms und 1,42 ± 0,10 ms geringere mittlere Lebensdauern der thermischen Neutronen auf.

Die mittlere Lebensdauer, abgeleitet aus den Gamma-Emissionen des Isotops ^{10}B, beträgt trotz des großen Absorptionsquerschnitts von Bor für Neutronen 1,66 ± 0,08 ms. Dies belegt, dass die Boratomkerne, die durch die Neutronen aktiviert werden, in den Komponenten der Bestrahlungseinrichtung wie Graphit oder Beton homogen verteilt sind. In einer räumlich konzentrierten Bormasse würden die thermischen Neutronen schneller absorbiert werden. Dieser Effekt ist ebenfalls bei der zeitabhängigen Netto-Zählrate der prompten Gamma-Quanten des Wasserstoffs erkennbar. Die CFK-Komponenten enthalten Wasserstoff in hohen Konzentrationen (2,9 %). Innerhalb der Bestrahlungskammer aus Graphit ist die Wasserstoffkonzentration äußerst gering (1,06 ppm). Die hohe räumliche Konzentration des Wasserstoffs in Verbindung mit dem großen Absorptionsquerschnitt für thermische Neutronen reduziert die mittlere Lebensdauer der thermischen Neutronen in diesen Komponenten auf 1,39 ± 0,08 ms.

Die Bestimmung des arithmetischen Mittelwerts für die mittlere Lebensdauer der thermischen Neutronen innerhalb eines 200-l-Fasses wird aus den zeitabhängigen Netto-Photopeakflächen der Elemente Eisen, Calcium und Silizium abgeleitet (siehe Tab 7.11). Es folgt eine mittlere Lebensdauer der thermischen

Neutronen von 1,55 ± 0,15 ms und eine maximale Lebensdauer der Neutronen von 12,82 ± 2,26 ms. Dieses Abklingverhalten des thermischen Neutronenflusses führt in Verbindung mit der eingestellten Pulsperiode (1000 µs, gemäß Standardbestrahlungsparametern) dazu, dass sich thermische Neutronen über mehrere Pulsperioden akkumulieren und der thermische Neutronenfluss nach wenigen Neutronenpulsen in eine Sättigung läuft. Der integrale mittlere thermische Neutronenfluss ist in der Sättigung 62 % höher als der integrale mittlere thermische Neutronenfluss nach einem einzelnen Neutronenpuls. Diese Sättigung wird ca. 7 ms nach Bestrahlungsbeginn erreicht (siehe Abb. 4.2).

Aus den Betrachtungen dieses Kapitels bzgl. dem aktiven Untergrund und der mittleren Lebensdauer der thermischen Neutronen folgt, dass eine Optimierung der MEDINA-Bestrahlungskammer immer eine mehrkriterielle Optimierung (Pareto-Optimierung) ist. Die erste Zielgröße ist ein geringer aktiver Untergrund. Realisierbar ist dies durch eine geeignete Materialauswahl anhand von Materialien mit geringen Wirkungsquerschnitten für einen thermischen Neutroneneinfang und reduzierte Materialverwendung beim Bau der Bestrahlungskammer. Die zweite Zielgröße ist der in der Sättigung zu erreichende thermische Neutronenfluss, welcher durch die mittlere Lebensdauer von thermischen Neutronen innerhalb der Bestrahlungskammer beeinflusst wird. Eine weitreichende Reduktion von Moderatormaterial beim Bau der Bestrahlungskammer reduziert zwar den aktiven Untergrund, ebenso jedoch auch die Lebensdauer der thermischen Neutronen und somit den Neutronenfluss. Die beiden Zielgrößen niedriger aktiver Untergrund und hoher Neutronenfluss sind gegenläufig. Beim Bau einer weiter optimierten Bestrahlungskammer muss unter Berücksichtigung der maximalen Neutronenquellstärke, der Messgeometrie und des Spektrometers die jeweils optimalste Konfiguration bestimmt werden.

Kapitel 8

Bestimmung von Neutronenflüssen

Zusammenfassung

In der prompten und verzögerten Gamma-Neutronen-Aktivierungsanalyse müssen für eine Quantifizierung einer Elementmasse das Neutronenspektrum und der Neutronenfluss in einer Probe bekannt sein. Dieses Kapitel beinhaltet die experimentellen Messungen und Analysen zur Bestimmung der für den Elementnachweis notwendigen Neutronenflüsse. Der epithermische und thermische Neutronenfluss im Mittelpunkt eines leeren 200-l-Fasses wurde durch die Aktivierungsanalyse eines durch Cadmium abgeschirmten und unabgeschirmten Goldmonitors bestimmt. Durch die Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse von Cadmiumblechen variabler Stärke wird dieser Neutronenfluss validiert. Der integrale Neutronenfluss ist der über ein Volumenobjekt gemittelte Neutronenfluss. Für eine repräsentative stoffliche Charakterisierung mit MEDINA muss der integrale Neutronenfluss in einem 200-l-Fass ermittelt werden. Dies kann über die Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse des Stahlfasses sowie der Verfüllmatrix geschehen. Notwendig hierfür ist die Bestimmung der Photopeak-Effizienz für Gamma-Quanten, welche aus dem Bezugsvolumen emittiert werden. Für die Bestimmung des integralen Neutronenflusses in einer homogenen Matrix wurde ein Leichtbeton, wie er für den Verguss radioaktiver Abfälle gebräuchlich ist, verwendet.

8.1 Bestimmung des thermischen und epithermischen Neutronenflusses im Mittelpunkt eines leeren Fasses

Die Bestimmung des thermischen und epithermischen Neutronenflusses in einem leeren 200-l-Fass erfolgte durch die separate Bestrahlung von einer durch Cadmium abgeschirmten sowie unabgeschirmten Goldfolie und die anschließende gammaspektrometrische Messung der durch (n,γ)-Reaktionen induzierten Aktivität von ^{198}Au nach Ende der Bestrahlung.

Zur Ermittlung des epithermischen Neutronenflusses wurde eine dünne Goldfolie zwischen zwei Cadmiumbleche an der Decke des Fasses so befestigt, dass der Goldmonitor hängend in der Mitte eines leeren 200-l-RRW-Fasses positioniert war (siehe Abb. 8.1, rechts). Die Cadmiumbleche hatten eine Stärke von jeweils einem Millimeter und eine Kantenlänge von ca. 125 mm. Zwischen die zwei Cadmiumbleche wurde mittig eine 0,1 mm dünne Goldfolie mit einer Masse von $m_{Au} = 0{,}1161$ g gelegt (siehe Abb. 8.1, links).



Abb. 8.1: *Experiment zur Bestimmung des Neutronenflusses im Mittelpunkt eines 200-l-RRW-Fasses. Die Goldfolie wird zur Bestimmung des epithermischen Neutronenflusses zwischen zwei Cadmiumblechen bestrahlt.*

Der für thermische Neutronen hohe Absorptionsquerschnitt von Cadmium (2522 ± 50 b) gewährleistet, dass bei einem Millimeter Blechstärke sämtliche auf das Cadmiumblech treffende thermische Neutronen absorbiert werden (siehe Gleichung 3.3) und die Goldfolie nicht durch thermische Neutronen aktiviert wird. Epithermische Neutronen, ab einem Energiebereich von 1 eV, können hingegen die Cadmiumbleche durchdringen und die Goldfolie aktivieren. Gold ist ein geeigneter Neutronenflussmonitor für epithermische Neutronen, weil das Element einen großen Wirkungsquerschnitt für den Einfang epithermischer Neutronen aufweist. Der integrale Wirkungsquerschnitt von Gold für die Absorption epithermischer und schneller Neutronen in einem Energiebereich von 0,5 eV bis 10 MeV (Resonanzintegral) beträgt 1571 ± 28 b. Gold hat mit ^{197}Au nur ein stabiles Isotop. Bei einer Aktivierung mit thermischen oder epithermischen Neutronen bildet sich das Radionuklid ^{198}Au, welches mit einer Halbwertszeit von 2,965 Tagen zerfällt.

Die Bestimmung des thermischen Neutronenflusses erfolgte durch die Bestrahlung einer 0,1 mm dünnen Goldfolie mit einer Masse von $m_{Au} = 0{,}1065$g ohne Cadmiumabschirmung (siehe Abb. 8.2). Die Position des Goldmonitors war hierbei ebenfalls in der Mitte eines leeren 200-l-RRW-Fasses. Der Wirkungsquerschnitt von Gold für die Absorption thermischer Neutronen beträgt 98,65 ± 0,09 b.

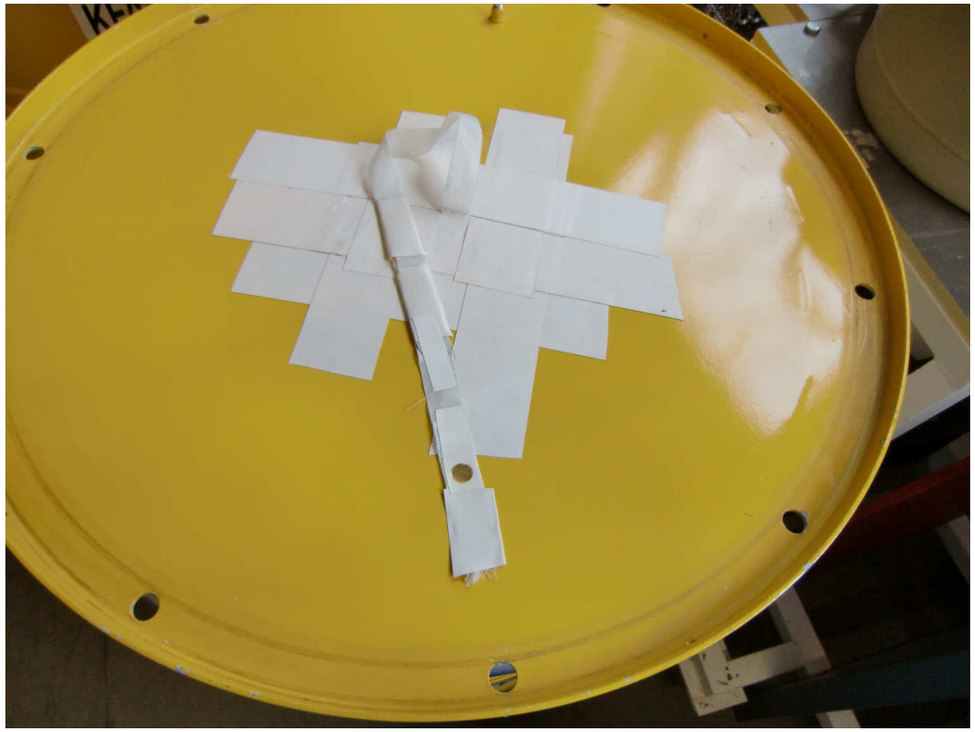


Abb. 8.2: *Experiment zur Bestimmung des thermischen Neutronenflusses im Mittelpunkt eines 200-l-RRW-Fasses. Gold wird als Neutronenflussmonitor im Mittelpunkt eines 200-l-RRW-Fasses bestrahlt.*

Die Bestrahlung der 200-l-RRW-Fässer inkl. der abgeschirmten und unabgeschirmten Goldfolien erfolgte innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer gemäß den Standardbestrahlungsparametern über einen Zeitraum von jeweils 3600 s. Am Ende der Bestrahlung und einer Wartezeit wurden die Goldfolien von der Bestrahlungsposition entnommen und jeweils auf einen Probeträger für die gammaspektrometrische Aktivitätsbestimmung des Aktivierungsprodukts ^{198}Au gelegt. Das Gamma-Spektrum der aktivierten Goldfolien wurde mit einem koaxialen HPGe-Detektor (20 % relative Effizienz) in einer Bleiabschirmung (Low-Level-Gamma-Spektroskopie) aufgenommen. Der Abstand zwischen Goldfolien und Detektorfrontfläche betrug 5 cm. Die Bestimmung der Aktivität von ^{198}Au am Ende der Bestrahlung erfolgte mittels der Auswertung der emittierten Gamma-Quanten mit einer Energie von 411,8 keV mit folgender Gleichung:

$$A_{Au-198} = \frac{P \cdot \lambda \cdot e^{\lambda t_d}}{I_\gamma \cdot \varepsilon_{E_\gamma} \left(1 - e^{-\lambda t_m}\right)} \qquad (8.1)$$

P ist die Netto-Photopeakfläche bei einer Energie von 411,8 keV, λ die Zerfallskonstante des Radionuklids ^{198}Au, t_d die Wartezeit zwischen Ende der Bestrahlung und Beginn der gammaspektrometrischen Messung, I_γ die Intensität der Gamma-Linie, ε_{E_γ} die Photopeak-Effizienz des Spektrometers bei 411,8 keV und t_m die Messzeit. Die Parameter für die Bestimmung der ^{198}Au-Aktivität der zwei Goldfolien sind in Tab. 8.1 aufgeführt.

Tab. 8.1: *Parameter der gammaspektrometrischen Messung der Goldfolien.*

Parameter	**Gold-Monitor in Cadmiumabschirmung**	**Gold-Monitor ohne Cadmiumabschirmung**
P	1328 (± 8,1 %)	1824,6 (± 3,18 %)
λ	$2{,}977 \cdot 10^{-6}$ s^{-1}	$2{,}977 \cdot 10^{-6}$ s^{-1}
t_d	39,2 min	11,8 min
t_m	90,0 h	22,06 h
ε_{E_γ}	0,01	0,01
I_γ	0,96	0,96
A_{Au-198}	**0,67 ± 0,06 Bq**	**2,67 ± 0,11 Bq**

Die Aktivität der Goldfolie induziert durch epithermische Neutronen beträgt am Ende der Bestrahlung $A_{Au-198,epi} = 0,67 \pm 0,06\ Bq$. Die Aktivität der Goldfolie induziert durch epithermische und thermische Neutronen beträgt am Ende der Bestrahlung $A_{Au-198,epi+th} = 2,67 \pm 0,11\ Bq$.

Die Bestimmung des epithermischen Neutronenflusses in der Mitte des 200-l-RRW-Fasses erfolgt unter Berücksichtigung der über die Eindringtiefe reduzierten Aktivierung mittels folgender Gleichung:

$$\phi_{epi} = \frac{2 \cdot A_{Au-198,epi} \cdot M_{Au} \cdot \Sigma_{Au} \cdot d_{Au} \cdot e^{\Sigma_{Cd} \cdot d_{Cd}}}{m_{Au} \cdot h \cdot N_A \cdot \sigma_{epi} \left(1 - e^{-\lambda \cdot t_b}\right) \cdot \left(1 - e^{\Sigma_{Au} \cdot d_{Au}}\right)} \qquad (8.2)$$

Die Größe d_{Au} und d_{Cd} sind die Stärken der Goldfolie bzw. der Cadmiumbleche. Σ_{Au} und Σ_{Cd} sind die makroskopischen Wirkungsquerschnitte für die Absorption epithermischer Neutronen von Gold und Cadmium. $\sigma_{epi,Au}$ ist das Resonanzintegral von Gold. N_A ist die Avogadaro-Konstante und h die Isotopenhäufigkeit des Isotops ^{197}Au.

Die Berechnung des thermischen Neutronenflusses in der Mitte des 200-l-RRW-Fasses erfolgt nachfolgend mit folgender Gleichung:

$$\phi_{th} = \frac{A_{Au-198,epi+th} \cdot M_{Au}}{m \cdot N_A \cdot h \cdot \sigma_{th} \cdot \left(1 - e^{-\lambda t_B}\right)} - \frac{0{,}44\sigma_{th,Au} + \sigma_{epi,Au}}{\sigma_{th,Au}} \cdot \phi_{epi} \cdot \frac{1 - e^{-\Sigma_{Au} \cdot d_{Au}}}{\Sigma_{Au} \cdot d_A} \quad (8.3)$$

$\sigma_{th,Au}$ ist der mikroskopische Wirkungsquerschnitt für die Absorption thermischer Neutronen.

Der thermische Neutronenfluss ϕ_{th} in der Mitte eines leeren 200-l-RRW-Fasses innerhalb der Bestrahlungskammer beträgt im Fall der Standardbestrahlungsparameter (2600 ± 233) n · cm^{-2} · s^{-1}. Der epithermische Neutronenfluss ϕ_{epi} an dieser Position beträgt (488 ± 4)2 n · cm^{-2} · s^{-1}. Die Tab. 8.1 fasst die Ergebnisse der experimentell ermittelten Neutronenflüsse zusammen. Das Verhältnis zwischen epithermischem und thermischem Neutronenfluss beträgt 5,32 ± 0,69.

Tab. 8.2: *Experimentell bestimmte Neutronenflüsse im Mittelpunkt eines leeren 200-l-RRW-Fasses*

epithermischer Neutronenfluss φ_{epi} in der Mitte eines leeren RRW-Fasses	**(488 ± 42) n · cm^{-2} · s^{-1}**
thermischer Neutronenfluss φ_{th} in der Mitte eines leeren RRW-Fasses	**(2600 ± 233) n · cm^{-2} · s^{-1}**

8.2 Validierung des experimentell ermittelten Neutronenflusses im Mittelpunkt eines leeren 200-l-RRW-Fasses

Für die Validierung des mit den Goldmonitoren bestimmten Neutronenflusses wurden Cadmiumbleche variabler Stärke hängend in der Mitte eines Fasses positioniert und bestrahlt. Während der Bestrahlungen wurden die durch die Neutronen-Aktivierung induzierten prompten Gamma-Quanten von Cadmium mit einer Energie von 558,3 keV und 651,2 keV nachgewiesen.

Die Masse der Cadmiumbleche lag zwischen 51,2 g und 409,6 g. Die Cadmiumbleche waren rechteckig mit einer Dicke d von 1 mm, 2 mm und 3 mm. Die Kantenlängen betrugen 49,5 mm, 83 mm und 124,6 mm (siehe Tab. 8.3). Insgesamt wurden neun Messungen gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern (siehe Tab. 5.7) durchgeführt. Die aufgenommenen Gamma-Spektren wurden mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet und die Zählraten bei den Energie von 558,3 keV und 651,2 keV bestimmt. Zum Vergleich werden die Zählraten der nachgewiesenen prompten Gamma-Quanten, induziert durch die Aktivierung der Cadmiumbleche mittels epithermischer und thermischer Neutronen, anhand folgender Gleichung berechnet:

$$Z_{E_\gamma} = \frac{m_{Cd}}{M_{Cd}} \cdot N_A \cdot \varepsilon_{E_\gamma} \cdot \frac{1 - e^{-\left(\mu/\rho\right) \cdot \rho \cdot d}}{\left(\mu/\rho\right) \cdot \rho \cdot d} \cdot \left[\frac{\sigma_{E_\gamma,th}}{d \cdot \Sigma_{th,Cd}} \cdot \phi_{th} \left(1 - e^{-\Sigma_{th,Cd} \cdot d}\right) + \frac{\sigma_{E_\gamma,epi}}{d \cdot \Sigma_{epi,Cd}} \phi_{epi} \left(1 - e^{-\Sigma_{epi,Cd} \cdot d}\right) \right] \quad (8.4)$$

Die partiellen Wirkungsquerschnitte von Cadmium bei 558,3 keV für eine Aktivierung mit thermischen Neutronen betragen 1860 ± 30 b und mit epithermischen Neutronen 35,2 ± 0,57 b. Die partiellen

Wirkungsquerschnitte von Cadmium bei 651,2 keV für eine Aktivierung mit thermischen Neutronen betragen 358 ± 5 b und mit epithermischen Neutronen 6,7 ± 0,1 b. Die Photopeak-Effizienzen ε_{E_γ} für den Fassmittelpunkt bei einer Energie von 558 keV und 651 keV betragen $1{,}417 \cdot 10^{-4}$ und $1{,}296 \cdot 10^{-4}$. Der Massenschwächungskoeffizient bei 558 keV und 651 keV beträgt für Cadmium $8{,}5 \cdot 10^{-2}$ cm²/g und $7{,}69 \cdot 10^{-2}$ cm²/g. Für den epithermischen und thermischen Neutronenfluss wurden die in Tab. 8.2 aufgeführten Werte verwendet.

Die mit Gl. 8.9 berechneten Zählraten werden in Tab. 8.3 mit den gemessenen Zählraten verglichen. In Abb. 8.4 ist der Vergleich grafisch dargestellt. Alle berechneten Zählraten stimmen mit den experimentellen Werten unter Berücksichtigung der Unsicherheiten überein. Die Ergebnisse der 9 Bestrahlungsversuche validieren den in Unterkapitel 8.1 bestimmten Neutronenfluss in der Mitte eines 200-l-RRW-Fasses.

Tab. 8.3: *Gegenüberstellung der experimentell ermittelten Zählraten Z der prompten Gamma-Emissionen bei 558,3 keV und 651,2 keV durch Bestrahlung von Cadmiumblechen mit variabler Stärke zu den rechnerisch bestimmten Zählraten.*

Masse [g]	**Oberfläche** [cm²]	**Stärke** [mm]	**Z bei 558 keV experimentell** [s⁻¹]	**Z bei 558 keV berechnet** [s⁻¹]	**Z bei 651 keV experimentell** [s⁻¹]	**Z bei 651 keV berechnet** [s⁻¹]
21,2	26,48	1	6,12 ± 0,98	6,50 ± 1,23	1,86 ± 0,46	1,15 ± 0,22
41,0	28,46	2	6,37 ± 0,89	6,23 ± 1,18	2,10 ± 0,42	1,11 ± 0,21
62,0	28,95	3	6,32 ± 0,80	6,29 ± 1,19	2,00 ± 0,40	1,19 ± 0,21
59,6	72,20	1	15,84 ± 1,50	18,27 ± 3,46	3,74 ± 0,48	3,23 ± 0,61
119,6	75,54	2	17,25 ± 0,89	18,18 ± 3,44	3,86 ± 0,43	3,24 ± 0,61
179,0	78,86	3	15,49 ± 0,95	18,15 ± 3,44	3,99 ± 0,44	3,26 ± 0,62
134,4	160,38	1	34,02 ± 2,04	41,23 ± 7,80	7,25 ± 0,87	7,29 ± 1,38
277,8	165,37	2	35,03 ±2,34	42,24 ± 7,99	8,67 ± 0,67	7,53 ± 1,42
409,6	170,34	3	34,88 ± 3,20	41,54 ± 7,86	8,16 ± 1,06	7,46 ± 1,41

Beim Vergleich zwischen den experimentell registrierten und den berechneten Zählraten ist ersichtlich, dass mit zunehmender Oberfläche die Abweichung zwischen den experimentellen und den berechneten Zählraten ansteigt. Das Modell der exponentiellen Absorption der thermischen und epithermischen Neutronen, wobei die makroskopischen Wirkungsquerschnitte für die Absorption thermischer und epithermischer Neutronen $\Sigma_{th,Cd}$ und $\Sigma_{epi,Cd}$ das Eindringprofil der Neutronen in das Cadmiumblech beschreiben, geht von einem bidirektionalen parallelen Neutronenfeld zum Cadmiumblech aus. Innerhalb des 200-l-RRW-Fasses treffen die Neutronen jedoch ungerichtet auf das Cadmiumblech. Es existiert ein isotropes Neutronenfeld. Die Vereinfachung im Berechnungsmodell wird bei der Aktivierung größerer Oberflächen durch die größeren Abweichungen zu den experimentell registrierten Zählraten manifestiert.

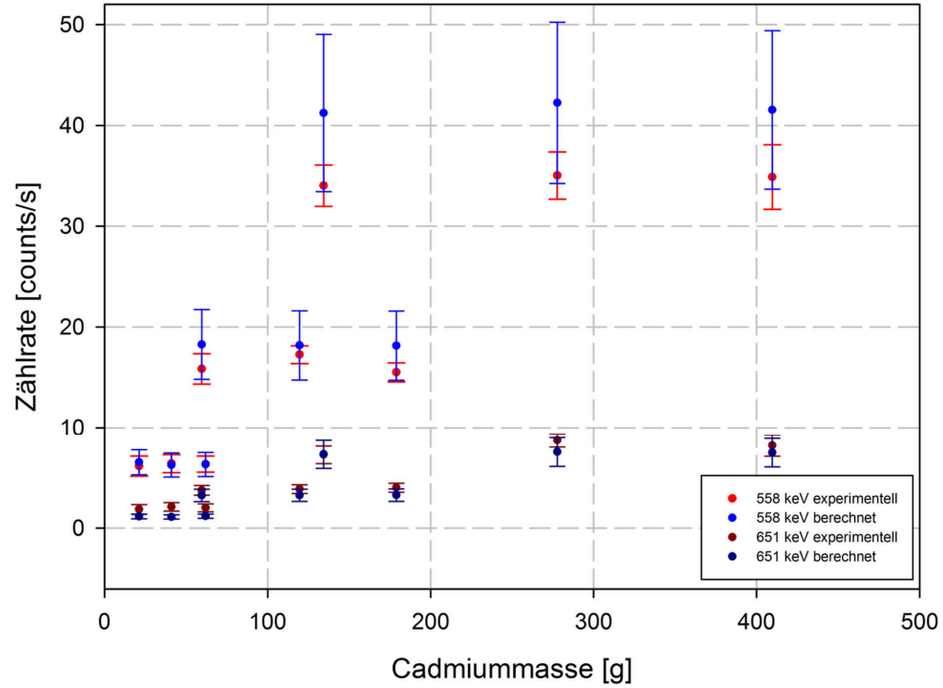


Abb. 8.4: *Gegenüberstellung der experimentell ermittelten Zählraten der prompten Gamma-Emissionen durch Bestrahlung von Cadmiumblechen zu den berechneten Zählraten.*

Neben der Validierung des mit den Goldmonitoren bestimmten Neutronenflusses zeigen die Versuche die Notwendigkeit der Berücksichtigung des Effektes der Neutronen-Selbstabschirmung. Bei der Bestrahlung von drei Cadmiumblechen unterschiedlicher Stärke und somit unterschiedlicher Masse werden nahezu die gleichen Zählrate experimentell nachgewiesen bzw. berechnet. Dies ist dadurch begründet, dass selbst unter Berücksichtigung einer Aktivierung von thermischen und epithermischen Neutronen die Neutronen nur eine sehr beschränkte Eindringtiefe in Materialien mit einem großen Einfangquerschnitt für Neutronen haben. Die epithermischen Neutronen welche eine höhere Eindringtiefe aufweisen, haben aufgrund des geringeren Wirkungsquerschnitts für eine Aktivierung mit epithermischen Neutronen einen geringen Beitrag an der gemessenen Zählrate. Die Zählrate bei einer Aktivierung von Cadmium oder anderen starken Neutronenabsorbern ist bei räumlich konzentrierten Elementen primär von der Oberfläche des Bestrahlungsobjektes abhängig (siehe Abb. 8.5). Sind die Elemente homogen in einer Abfallmatrix verteilt, besteht eine solche Oberflächenabhängigkeit nicht.

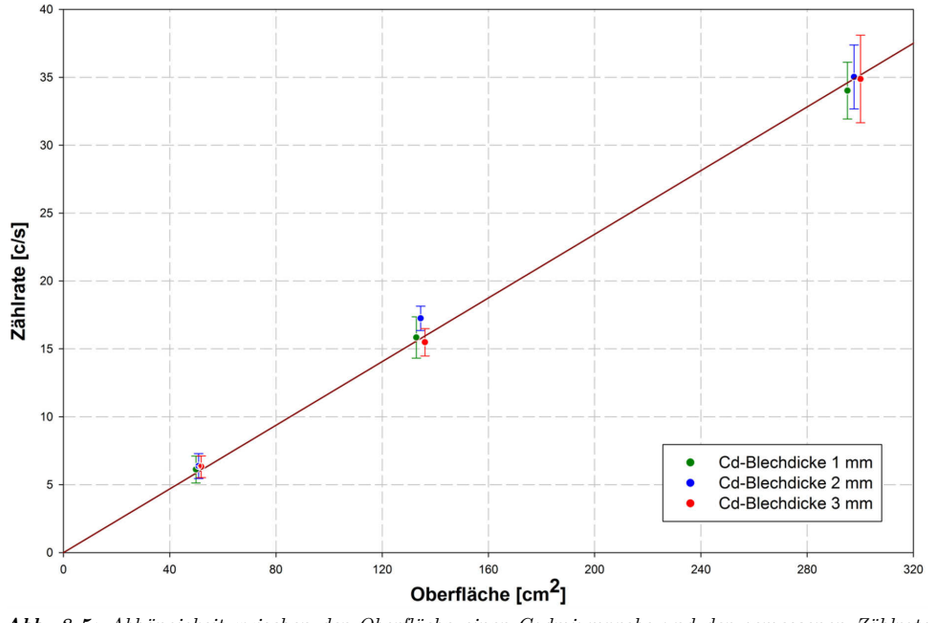


Abb. 8.5: *Abhängigkeit zwischen der Oberfläche einer Cadmiumprobe und der gemessenen Zählrate der Prompt-Gamma-Quanten von Cadmium bei 558,3 keV.*

Anhand des Verhältnisses zwischen dem makroskopischen Absorptionsquerschnitt für thermische Neutronen und dem Resonanzintegral eines Elements kann hergeleitet werden, inwieweit eine direkte Massenabhängigkeit der Zählrate gegeben ist. Die Prompt-Gamma-Aktivierungs-Analyse von Stoffen mit einem geringen Absorptionsquerschnitt für thermische Neutronen oder einem höheren Resonanzintegral führt auch ohne Berücksichtigung des Effekts der Neutronen-Selbstabschirmung zu einer deutlicheren Abhängigkeit zwischen den bestrahlten Massen und der registrierten Zählrate.

8.3 Integraler Neutronenfluss im Fasskörper

Die Bestimmung des integralen thermischen und epithermischen Neutronenflusses im Stahlkörper eines Fasses geschah durch die Messung eines leeren sowie eines mit einer Betonmatrix gefüllten 200-l-RRW-Fasses. Die Bestrahlung und Spektrenaufnahme erfolgte gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern (siehe Tab. 5.7). Das aufgenommene Gamma-Spektrum wurde mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet.

Ein Stahlfass besteht zu ca. 99 Ma-% aus Eisen (siehe Unterkapitel 6.1). Die Neutronen-Aktivierung des Eisens führt zu prompten Gamma-Emissionen von Eisen in einem Energiebereich zwischen 100 keV und 9,3 MeV. Die Intensität dieser emittierten prompten Gamma-Quanten sowie die Verteilung über einen breiten Energiebereich erlauben eine gesicherte Bestimmung des über das Stahlfass gemittelten thermischen und epithermischen Neutronenflusses. Im registrierten Gamma-Spektrum wurden hierzu die

Netto-Photopeakflächen der durch Neutronenbestrahlung induzierten prompten Gamma-Quanten von Eisen bestimmt (siehe Tab. 8.4 und Tab. 8.5).

Für die Bestimmung des über das Stahlfass gemittelten Neutronenflusses sind die Masse des leeren Fasses und die integrale Photopeak-Effizienz für Gamma-Emissionen aus dem leeren Fasskörper notwendig. Die Fassmasse betrug 53,22 kg. Bei der Charakterisierung von unbekannten Fässern muss die Fassmasse der Abfalldokumentation bzw. der Fassspezifikation entnommen werden oder plausibel hergeleitet werden. Die Integrale Photopeak-Effizienz für Gamma-Emissionen aus dem Stahlmantel, dem Deckel und dem Boden eines leeren 200-l-RRW-Fasses wurde in Unterkapitel 7.2 bestimmt. Die Bestimmung des integralen thermischen Neutronenflusses $\overline{\Phi_{th,Fk}}$ im Fasskörper erfolgt mit folgender Gleichung:

$$\overline{\Phi_{th,Fk}} = \frac{P_{E_\gamma,Fe} \cdot M_{Fe}}{N_A \cdot m_{Fass} \cdot \left(\sigma_{E_\gamma,th} + \frac{0,44 \cdot \sigma_{E_\gamma,th} + \sigma_{E_\gamma,epi}}{5,32} \right) \cdot \varepsilon_{E_\gamma,Fass} \cdot n \cdot t_c} \tag{8.5}$$

$P_{E_\gamma,Fe}$ ist die Netto-Photopeakfläche einer prompten Gamma-Linie von Eisen, M_{Fe} ist molare Masse von Eisen, m_{Fass} ist der Elementanteil des Eisens an der Fassmasse, $\sigma_{E_\gamma,th}$ und $\sigma_{E_\gamma,epi}$ sind die partiellen Wirkungsquerschnitte von Eisen für durch thermische oder epithermische Neutronen induzierte Gamma-Emissionen, $\varepsilon_{E_\gamma,Fass}$ ist die integrale Photopeak-Effizienz des leeren Fasskörpers und $n \cdot t_c$ ist die Akquisitionszeit der Messung, die bei den Standardmessparametern 1860 s beträgt.

In Tab. 8.4 werden die variablen Parameter der Gl. 8.5 sowie die errechneten Neutronenflüsse aufgeführt. Der mittlere integrale thermische Neutronenfluss im Fasskörper des leeren 200-l-RRW-Fasses beträgt 3202 ± 344 n $\cdot$ cm^{-2} $\cdot$ s^{-1}. Der integrale epithermische Neutronenfluss beträgt 602 ± 112 n $\cdot$ cm^{-2} $\cdot$ s^{-1}. Für die Bestimmung des epithermischen Neutronenflusses wurde das mit dem Goldmonitor ermittelte Verhältnis zwischen epithermischen und thermischen Neutronenfluss verwendet.

Tab. 8.4: *Integraler thermischer und epithermischer Neutronenfluss im Fasskörper. Die Spektrenaufnahme geschah bei Messung eines leeren 200-l-RRW-Fasses unter den Standardbestrahlungs- und Messparametern.*

Isotop	**γ-Energie** [keV]	**Netto-Peakfläche** [#]	**Fehler** [#]	**$\sigma_{E\gamma,th}$** [barn]	**Photopeak-Effizienz** [#]	**Φ_{therm}** [n · cm^{-2}s^{-1}]	**Fehler** [n · cm^{-2}s^{-1}]
^{56}Fe	352,34	112431	5959	0,2730	1,0615e-4	3071	489
	411,57	9275	965	0,0220	1,0061e-4	3317	606
	691,96	43848	2105	0,1370	8,1313e-5	3116	491
	810,71	7524	1061	0,0274	7,5910e-5	2863	590
	898,27	13899	486	0,0540	7,2573e-5	3412	530
	920,83	5714	514	0,0199	7,1783e-5	2983	702
	1018,93	14996	600	0,0507	6,8625e-5	3092	688
	1612,78	31775	5757	0,1530	5,5103e-5	3516	576
	1725,29	37593	6180	0,1810	5,3171e-5	3616	568
	2066,08	3239	405	0,0146	4,8032e-5	2742	802
	2129,47	3486	290	0,0206	4,7175e-5	2949	543
	2721,21	6554	459	0,0384	4,0265e-5	2971	593
	2954,12	1705	303	0,0110	3,7960e-5	2807	432
	3103,26	1911	235	0,0172	3,6574e-5	3166	554
	3185,86	3453	269	0,0183	3,5833e-5	3293	533
	3267,25	4955	470	0,0367	3,5119e-5	3236	555
	3413,13	6757	446	0,0449	3,3877e-5	3317	548
	3436,66	6923	325	0,0450	3,3681e-5	3156	546
	4218,27	9506	2388	0,0990	2,7721e-5	3355	555
	4406,07	5017	346	0,0453	2,6429e-5	3043	540
	4463,01	1919	236	0,0162	2,6048e-5	2840	487
	4809,99	3952	340	0,0416	2,3826e-5	2405	466
	5920,45	15026	1604	0,2250	1,7923e-5	3600	698
	6018,53	14896	1960	0,2270	1,7485e-5	3232	752
	6380,67	1287	223	0,0187	1,5960e-5	3656	714
	7631,13	31309	1896	0,6530	1,1525e-5	4168	705
	7645,54	25765	2138	0,5490	1,1480e-5	3413	782
	9297,68	2604	384	0,0747	8,2914e-6	3328	700
					Mittelwert Φ_{th}:	**3202**	**± 344**
					Mittelwert Φ_{epi}:	**602**	**± 112**

In Tab. 8.5 werden die variablen Parameter der Gl. 8.5 sowie die errechneten Neutronenflüsse für den Fall aufgeführt, dass sich im Fass eine Betonmatrix befindet. Hierbei ist zu beachten, dass für die integrale Photopeak-Effizienz die integrale Photopeak-Effizienz für Gamma-Emissionen aus dem Fasskörper eines 200-l-Fasses gefüllt mit der Betonmatrix verwendet werden muss. Der mittlere integrale thermische Neutronenfluss im Fasskörper beträgt dann 3375 ± 264 n · cm^{-2} · s^{-1}. Der integrale epithermische Neutronenfluss beträgt 634 ± 168 n · cm^{-2} · s^{-1}. Für die Bestimmung des epithermischen Neutronenflusses wurde das mit dem Goldmonitor ermittelte Verhältnis zwischen epithermischen und thermischen Neutronenfluss verwendet.

Tab. 8.5: *Integraler thermischer und epithermischer Neutronenfluss im Fasskörper. Die Spektrenaufnahme geschah bei Messung eines 200-l-RRW-Fasses gefüllt mit einer Betonmatrix unter den Standardbestrahlungs- und Messparametern.*

Isotop	**γ-Energie** [keV]	**Netto-Peakfläche** [#]	**Fehler** [#]	$\sigma_{E\gamma,th}$ [barn]	**Photopeak-Effizienz** [#]	Φ_{therm} [n · cm^{-2}s^{-1}]	**Fehler** [n · cm^{-2}s^{-1}]
^{56}Fe	352,35	67007	5427	0,2730	5,976E-05	3251	554
	411,57	5374	1102	0,0220	5,641E-05	3428	871
	691,96	23563	1178	0,1370	4,607E-05	2955	467
	810,71	4973	751	0,0274	4,343E-05	3308	704
	1018,93	9005	558	0,0507	3,997E-05	3518	571
	1612,79	21565	4020	0,1530	3,344E-05	3336	798
	1725,29	25424	4243	0,1810	3,248E-05	3424	768
	3413,13	4584	466	0,0449	2,234E-05	3618	656
	3436,66	4568	448	0,0450	2,223E-05	3615	648
	4218,27	7022	1828	0,0990	1,880E-05	2986	897
	5920,45	11161	1263	0,2250	1,270E-05	3092	581
	6018,53	11157	1494	0,2270	1,242E-05	3133	630
	898,27	11029	1047	0,0540	4,184E-05	3864	686
	920,84	3917	666	0,0199	4,146E-05	3758	852
	7631,14	23516	1406	0,6530	8,483E-06	3360	543
	7645,55	17874	1453	0,5490	8,453E-06	3049	520
	4406,07	3559	274	0,0453	1,803E-05	3450	582
	2721,21	4729	454	0,0384	2,579E-05	3780	673
	2129,47	2605	359	0,0206	2,941E-05	3404	693
	4463,01	1158	324	0,0162	1,780E-05	3180	1009
					Mittelwert Φ_{th}:	**3375**	**± 264**
					Mittelwert Φ_{epi}:	**634**	**± 168**

Der integrale thermische Neutronenfluss im Fasskörper ist etwas höher als der thermische Neutronenfluss im Zentrum des Fasses, da sich Anteile an der Mantelfläche des Fasses näher am Neutronengenerator und an der Wand der Graphitkammer befinden. Der Neutronenfluss im Fasskörper steigt bei einer Abfallmatrix aus Beton durch die in-situ Moderation des Betons um 5,4 % an. Dieser Anstieg liegt jedoch im Bereich der Unsicherheit des integralen Neutronenflusses, der 7,8 % beträgt.

8.4 Integraler Neutronenfluss in der Betonmatrix

Um den integralen thermischen und epithermischen Neutronenfluss in einer Verfüllmatrix zu bestimmen, müssen die Elementzusammensetzung der Matrix sowie die energie- und materialabhängige Effizienz für Gamma-Strahlung, die aus der Matrix emittiert wird, bekannt sein. Als Bespiel für eine bekannte homogene Verfüllmatrix wird der Leichtbeton, dessen Spezifikation in Kapitel 6.2 dargelegt wird, herangezogen. Die integrale Photopeak-Effizienz für Gamma-Emissionen, emittiert aus dieser Betonmatrix, ist bekannt und in Abb. 7.8 dargestellt. Die Elementzusammensetzung der Betonmatrix

beruht auf Herstellerangaben und wurde mit einer PGNAA-Analyse in Budapest bestätigt und ergänzt. Hierdurch ist die Elementzusammensetzung der Betonmatrix genauer spezifiziert.

Die Bestimmung der integralen Neutronenflüsse in einer Verfüllmatrix sowie dem Fasskörper geschah durch die Messung eines mit einer Betonmatrix gefüllten 200-l-RRW-Fasses. Die Bestrahlung und Spektrenaufnahme erfolgte gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern (siehe Tab. 5.7). Das aufgenommene Gamma-Spektrum wurden mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet.

Die Masse des Stahlfasses betrug 52,23 kg. Die im Inneren befindliche Betonmatrix hatte eine Masse von 199,5 kg. Anhand der Simulation des ortsabhängigen Neutronenflusses innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer, beispielhaft dargestellt in Abb. 5.19, ist ersichtlich, dass der Neutronenfluss in der Matrix inhomogen ist. Wie groß der Gradient des Neutronenflusses ist, ist von den Moderations- und Absorptionseigenschaften der Matrix für Neutronen abhängig. Der integrale Neutronenfluss in einem großvolumigen Objekt ist die Mittelung des Neutronenflusses über das Bezugsvolumen. Die Neutronen-Aktivierung der Betonmatrix führt zu prompten Gamma-Emissionen der homogen verteilten Matrixelemente wie z. B. Kalzium, Silizium oder Kalium.

Im registrierten Gamma-Spektrum wurden die Netto-Photopeakflächen der durch Neutronenbestrahlung induzierten prompten Gamma-Quanten von Matrixelementen und von Eisen bestimmt (siehe Tab. 8.5). Aus den aus der Matrix emittierten und nachgewiesenen Gamma-Quanten kann der integrale Neutronenfluss der Betonmatrix und aus der Aktivierung von Eisen der integrale Neutronenfluss in der die Matrix umgebenden Stahlumhüllung des Fasses bestimmt werden. Der Bestimmung des thermischen Neutronenflusses $\overline{\Phi_{th,Matrix}}$ in der Betonmatrix erfolgt mit folgender Gleichung:

$$\overline{\Phi_{th,Matrix}} = \frac{P_{E_\gamma,ME} \cdot M_{ME}}{N_A \cdot m_{Matrix} \cdot \left(\sigma_{E_\gamma,th} + \frac{0,44 \cdot \sigma_{E_\gamma,th} + \sigma_{E_\gamma,epi}}{5,32} \right) \cdot \varepsilon_{E_\gamma,Matrix} \cdot n \cdot t_c} \tag{8.6}$$

$P_{E_\gamma,ME}$ ist die Netto-Photopeakfläche einer prompten Gamma-Linie von einem Matrixelement, M_{ME} die molare Masse des jeweiligen Matrixelements, m_{Matrix} der Elementanteil des jeweiligen Elements an der Matrix, $\sigma_{E_\gamma,th}$ und $\sigma_{E_\gamma,epi}$ sind die partiellen Wirkungsquerschnitte für durch thermische oder epithermische Neutronen induzierte Gamma-Emissionen der jeweiligen Matrixelemente und $\varepsilon_{E_\gamma,Matrix}$ ist die integrale Photopeak-Effizienz für Gamma-Emissionen aus der Betonmatrix.

In Tab. 8.6 werden die variablen Parameter der Gl. 8.6 und die errechneten Neutronenflüsse aufgeführt. Der Mittelwert für den integralen thermischen Neutronenfluss in der Betonmatrix beträgt 3179 ± 632 n · $cm^{-2} \cdot s^{-1}$. Der integrale epithermische Neutronenfluss in der Betonmatrix beträgt 598 ± 119 n · $cm^{-2} \cdot s^{-1}$.

Tab. 8.6: *Integraler thermischer und epithermischer Neutronenfluss innerhalb einer Betonmatrix aufgenommen unter Standardbestrahlungs- und Messparametern.*

Isotop	γ-Energie [keV]	Netto-Peakfläche	Fehler	Masse Element [g]	Molaremasse [g/mol]	$\sigma_{E\gamma,th}$ [barn]	Effizienz [#]	Φ_{th} [n · cm^{-2}s^{-1}]	Fehler
^{1}H	2223,3	79248	381	2793	1,00	0,3326	2,16E-05	3117	467
^{10}B	477,6	149572	20196	18,886	10,80	716	2,57E-05	3945	796
^{28}Si	1273,3	4256	830	34646,5	28,09	0,0289	2,49E-05	3840	944
^{28}Si	2092,9	4078	924	34646,5	28,09	0,0331	2,21E-05	3589	975
^{28}Si	3538,9	7263,7	472	34646,5	28,09	0,119	1,68E-05	2191	358
^{39}K	770,3	6544	806	2759,75	39,09	0,903	2,55E-05	3124	606
^{40}Ca	1942,7	31716	2840	46549,99	40,08	0,352	2,27E-05	2574	449
^{40}Ca	2001,3	6202	546	46549,99	40,08	0,0659	2,25E-05	2742	476
^{40}Ca	2009,8	4330	515	46549,99	40,08	0,0409	2,25E-05	3149	602
^{40}Ca	6419,6	6544	704	46549,99	40,08	0,176	7,17E-06	3513	648
							Mittelwert Φ_{th}:	**3179**	**± 598**
							Mittelwert Φ_{epi}:	**598**	**± 119**

Für die Bestimmung des epithermischen Neutronenflusses wurde das mit dem Goldmonitor ermittelte Verhältnis zwischen epithermischen und thermischen Neutronenfluss verwendet. In Tab. 8.7 werden die im Kapitel bestimmten Neutronenflüsse gegenübergestellt.

Tab. 8.7: *Innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer experimentell bestimmte Neutronenflüsse.*

Beschreibung Neutronenfluss	Φ_{th} [n · cm^{-2}s^{-1}]	Φ_{epi} [n · cm^{-2}s^{-1}]
Mitte leeres 200-l-RRW-Fass	**2600 ± 233**	**488 ± 42**
Integral im Fasskörper, leeres Fass	**3202 ± 344**	**602 ± 112**
Integral im Fasskörper, Fass gefüllt mit Betonmatrix	**3375 ± 244**	**634 ± 168**
Integral in der Betonmatrix	**3179 ± 332**	**598 ± 119**

Bei einer homogenen Elementverteilung und genauen Kenntnissen der Elementzusammensetzung der Matrix ist die Bestimmung des Neutronenflusses anhand der Aktivierung der Matrix am repräsentativsten, da hierbei als Bezugsvolumen das gesamte Fass berücksichtigt wird. Bei der Charakterisierung von radioaktiven Abfällen liegen jedoch meist keine Daten vor, die den hierfür notwendigen Detailierungsgrad aufweisen. In diesem Fall, einer unbekannten Elementzusammensetzung innerhalb eines Probefasses, kann das den Abfall umhüllende Stahlfass als Neutronenflussmonitor verwendet werden. Hierfür ist nur die Masse und Geometrie des Stahlfasses als Grundlage erforderlich.

Der integrale thermische Neutronenfluss im Fasskörper ist um 6,2 % größer als der integrale thermische Neutronenfluss in einer Betonmatrix. Diese Differenz liegt im Bereich der Unsicherheiten des integralen Neutronenflusses.

Durch die Moderationseigenschaften der Betonmatrix steigt der thermische Neutronenfluss im Fasskörper im Vergleich zu einem leeren Fasses um 5,4 % an. Dieser Anstieg liegt ebenfalls im Bereich der Unsicherheiten des integralen Neutronenflusses. Hieraus kann weiterhin gefolgert werden, dass das Stahlfass ein geeigneter Neutronenflussmonitor einer Messung ist und eine Betonmatrix einen vernachlässigbaren Effekt auf den Neutronenflussmonitor hat. Inwieweit diese Matrixunabhängigkeit bei anderen Matrices besteht, ist zu prüfen.

Bei einer inhomogenen Elementverteilung in einem 200-l-Fass ist die Bestimmung des integralen Neutronenflusses im Fass über die Aktivierung des im Stahlfass enthaltenen Eisens durchzuführen. Sollte sich in dem zu charakterisierenden Fass innerhalb des Nutzvolumens ebenfalls Eisen befinden, so ist anhand der winkelabhängigen Spektren nur das winkelunabhängige Signal für die Quantifizierung des Neutronenflusses zu verwenden. Enthält die Verfüllmatrix Eisen, so werden die durch Neutronenaktvierung induzierten niederenergetischen Prompt-Gamma-Quanten von Eisen aus der Matrix deutlich stärker abgeschirmt als die aus der Fasswandung. Bei der Bestimmung des Neutronenflusses über die Prompt-Gamma-Quanten von Eisen stellt sich eine Abhängigkeit zwischen Gamma-Energie und bestimmtem integralen Neutronenfluss ein. Mit ansteigender Gamma-Energie wird der bestimmte Neutronenfluss ansteigen. Weitere Forschungsarbeiten müssen untersuchen, bis zu welcher Grenzkonzentration von Eisen in der Abfallmatrix die Bestimmung des integralen thermischen Neutronenflusses unabhängig von der Gamma-Energie ist.

8.5 Residualaktivität von Probematerial

Die durch die Neutronen-Aktivierung induzierte Radioaktivität hängt von der Elementzusammensetzung einer Probe, dem Neutronenfluss und der Bestrahlungszeit ab. Die nach einer Bestrahlung vorhandene Residualaktivität ist von der charakteristischen Halbwertszeit der gebildeten Aktivierungsprodukte und der Abklingzeit nach der Bestrahlung abhängig. Nachdem der integrale Neutronenfluss in der Betonmatrix im vorigen Kapitel quantifiziert wurde und das Energie-Spektrum des Neutronenflusses anhand von numerischen Simulationen mit MCNP ermittelt ist, werden mit dem Computercode ORIGEN /8-1/ Aktivierungs- und Zerfallsanalysen durchgeführt. Konservativ werden für die Aktivierung ein Neutronenfluss von 4500 $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$ mit dem durch MCNP ermittelten Neutronen-Energie-Spektrum und eine Bestrahlungszeit von 16.000 Sekunden vorausgesetzt.

Anhand der Aktivierungs- und Zerfallsanalysen kann die Fragestellung beantwortet werden, wie groß die durch eine Bestrahlung induzierte Aktivität für ein jeweiliges Element ist, bzw. ob nicht-radioaktives Probematerial durch eine Messung radioaktiv wird. Übersteigt die radionuklidspezifische Aktivität einer Probe eine Freigrenze der StrlSchV, fällt damit einhergehend die Probe zeitlich beschränkt unter den Geltungsbereich des AtG und die untergeordneten Verordnungen. Wird eine Probe durch die Bestrahlung radioaktiv, wird dargelegt, wann die induzierte radionuklidspezifische Aktivität soweit abgeklungen ist, dass die Probe aus dem Geltungsbereich des AtG als radioaktiver Stoff entlassen werden kann. In

Tab. 8.8 sind die Ergebnisse der Aktivierungs- und Zerfallsanalysen für die Elemente mit den Ordnungszahlen 1 (H) bis 92 (U) dargestellt. Für die Aktivierungsanalysen wurde die natürliche Isotopenhäufigkeit der Elemente unterstellt. Die Aktivierung von künstlichen Isotopen bzw. Elementen wie Technetium wurde nicht untersucht.

***Tab. 8.8**: Induzierte spezifische Aktivität durch eine MEDINA-Messung mit einer Bestrahlungsdauer von 16.000 Sekunden gemäß Standardbestrahlungsbedingungen.*

Element	**Nat. spez. Aktivität** [Bq/g]	**Bestrahlung 16.000 s** [Bq/g]	**Zerfall 1 Stunde** [Bq/g]	**Zerfall 24 Stunden** [Bq/g]	**Zerfall 7 Tage** [Bq/g]	**Zerfall 30 Tage** [Bq/g]
Ir	0,00E+00	1,48E+02	9,33E+01	4,95E+01	3,84E+00	2,89E+00
Sc	0,00E+00	5,81E+02	1,86E+00	1,82E+00	1,72E+00	1,42E+00
Tm	0,00E+00	1,32E+02	1,65E+00	1,64E+00	1,59E+00	1,40E+00
Li	0,00E+00	1,31E+01	7,86E-01	7,86E-01	7,85E-01	7,82E-01
Eu	0,00E+00	7,94E+03	7,37E+03	1,86E+03	8,17E-01	7,73E-01
Lu	6,55E+01	1,51E+02	1,27E+02	1,38E+01	5,51E+00	5,14E-01
Tb	0,00E+00	5,20E-01	5,20E-01	5,16E-01	4,87E-01	3,90E-01
Ta	5,48E-04	5,42E-01	4,00E-01	3,86E-01	3,73E-01	3,24E-01
Yb	0,00E+00	2,42E+02	1,26E+01	8,87E+00	3,45E+00	2,34E-01
Th	4,06E+04	9,14E+01	5,80E+01	1,87E+02	1,12E+00	2,07E-01
Os	0,00E+00	8,49E+00	8,11E+00	3,58E+00	3,46E-01	1,17E-01
Co	0,00E+00	9,19E+02	1,75E+01	1,15E-01	1,14E-01	1,13E-01
Cs	0,00E+00	3,35E+01	2,64E+01	4,24E-01	9,46E-02	7,56E-02
U	5,05E+04	2,32E+02	3,51E+01	3,76E+00	5,00E-01	6,91E-02
Hf	0,00E+00	2,22E+02	3,67E-01	1,22E-01	8,74E-02	6,09E-02
Sb	0,00E+00	4,77E+00	3,92E+00	3,23E+00	7,51E-01	6,08E-02
Re	8,89E+02	8,35E+02	2,50E+02	8,99E+01	4,26E+00	5,93E-02
Cr	0,00E+00	5,72E-01	6,49E-02	6,36E-02	5,48E-02	3,08E-02
Ag	0,00E+00	9,86E+02	5,06E-02	4,66E-02	3,80E-02	2,77E-02
In	2,21E-01	6,69E+03	1,59E+03	3,96E-02	3,51E-02	2,54E-02
Rb	9,16E+02	2,09E+00	1,54E-01	6,43E-02	5,11E-02	2,17E-02
Ge	0,00E+00	9,04E+00	2,90E+00	1,69E-01	8,64E-02	2,17E-02
Au	0,00E+00	4,41E+01	4,37E+01	3,58E+01	7,67E+00	2,08E-02
Cl	0,00E+00	3,28E+00	1,03E+00	2,86E-02	2,53E-02	1,73E-02
Hg	0,00E+00	1,62E+00	1,36E+00	1,08E+00	2,32E-01	1,41E-02
Er	0,00E+00	8,57E+01	4,05E+00	8,55E-01	6,90E-02	1,41E-02
P	0,00E+00	2,00E+00	8,18E-01	6,19E-02	4,21E-02	1,38E-02
Ce	9,97E+01	1,41E-01	1,35E-01	8,16E-02	2,37E-02	1,18E-02
Ru	0,00E+00	1,08E+00	9,43E-01	1,76E-01	2,54E-02	1,05E-02
Se	0,00E+00	7,49E+01	2,10E+00	1,47E-02	9,81E-03	8,46E-03
Zn	0,00E+00	7,70E+00	3,82E+00	9,53E-02	8,16E-03	7,59E-03
S	0,00E+00	7,69E-02	4,32E-02	2,90E-02	2,17E-02	7,34E-03
W	0,00E+00	1,44E+01	1,21E+01	7,08E+00	1,17E-01	7,15E-03
Gd	1,56E-03	4,17E+00	1,53E+00	7,91E-01	3,27E-02	7,09E-03
Xe	0,00E+00	1,33E+00	6,54E-01	3,06E-01	3,02E-02	6,52E-03
Nb	0,00E+00	3,54E-02	3,53E-02	3,34E-02	2,19E-02	4,52E-03
I	0,00E+00	1,20E+02	2,26E+01	2,10E-02	1,42E-02	4,17E-03
Nd	1,04E-02	2,15E+00	1,03E+00	1,43E-01	2,78E-02	3,98E-03
Tl	0,00E+00	9,39E-01	4,03E-03	3,98E-03	3,97E-03	3,92E-03
Ca	0,00E+00	1,17E-01	3,97E-02	7,42E-03	6,00E-03	3,80E-03
Te	9,21E-02	2,60E+00	1,45E+00	1,52E-01	1,04E-02	3,14E-03

Tab. 8.8, Fortsetzung: *Induzierte spezifische Aktivität durch eine MEDINA-Messung mit einer Bestrahlungsdauer von 16.000 Sekunden gemäß Standardbestrahlungsbedingungen.*

Element	Nat. spez. Aktivität [Bq/g]	Bestrahlung 16.000 s [Bq/g]	Zerfall 1 Stunde [Bq/g]	Zerfall 24 Stunden [Bq/g]	Zerfall 7 Tage [Bq/g]	Zerfall 30 Tage [Bq/g]
Ni	0,00E+00	1,79E-01	1,34E-01	4,56E-03	3,57E-03	2,87E-03
Sm	1,24E+02	5,75E+01	4,38E+01	3,15E+01	3,72E+00	2,59E-03
Pd	0,00E+00	2,58E+01	2,25E+01	8,57E+00	1,27E-02	1,65E-03
Sn	0,00E+00	3,34E-01	8,94E-02	4,88E-02	4,23E-03	1,17E-03
Ba	0,00E+00	2,03E+00	1,18E+00	8,01E-03	2,45E-03	1,10E-03
Ar	0,00E+00	1,36E+01	9,25E+00	9,68E-03	1,40E-03	8,88E-04
Mn	0,00E+00	1,76E+02	1,34E+02	9,16E-01	8,79E-04	8,35E-04
Sr	0,00E+00	1,81E+00	1,38E+00	1,46E-02	9,10E-04	6,79E-04
Cd	0,00E+00	7,32E-01	5,40E-01	1,41E-01	2,07E-02	6,78E-04
Fe	0,00E+00	2,90E-01	2,18E-01	2,27E-03	7,54E-04	6,62E-04
Zr	0,00E+00	8,92E-02	8,68E-02	5,57E-02	9,89E-03	5,91E-04
Y	0,00E+00	7,10E-01	6,99E-01	5,60E-01	1,18E-01	4,07E-04
Rh	0,00E+00	2,60E+03	4,41E-02	4,07E-04	3,93E-04	3,52E-04
Dy	0,00E+00	1,69E+04	6,70E+03	2,81E+01	3,66E-04	3,17E-04
Pt	1,47E-02	4,44E+00	1,58E+00	3,47E-01	4,23E-02	3,00E-04
Bi	0,00E+00	6,75E-03	5,97E-03	4,99E-03	2,28E-03	2,68E-04
Ti	0,00E+00	2,21E-01	1,91E-02	1,17E-02	1,83E-03	2,17E-04
Mo	0,00E+00	9,16E-01	1,96E-01	6,08E-02	1,34E-02	1,69E-04
Kr	0,00E+00	6,53E+01	4,26E+01	9,91E-02	1,33E-03	7,50E-05
He	0,00E+00	4,96E-05	4,96E-05	4,96E-05	4,95E-05	4,94E-05
La	6,28E-01	5,05E+00	4,97E+00	3,61E+00	3,02E-01	2,71E-05
Pr	0,00E+00	9,91E+01	2,85E+01	1,24E+01	6,70E-02	2,55E-05
Ho	0,00E+00	2,76E+02	2,21E+02	4,12E+01	9,79E-01	1,75E-05
Na	0,00E+00	6,23E+01	1,25E+01	5,30E+00	6,85E-03	1,74E-05
N	0,00E+00	7,22E-02	1,03E-03	8,18E-06	8,18E-06	8,18E-06
Cu	0,00E+00	2,27E+01	1,06E+01	3,83E+00	1,48E-03	7,97E-06
Br	0,00E+00	2,07E+02	5,61E+01	6,23E+00	2,41E-01	4,73E-06
K	3,17E+01	6,08E-01	5,63E-01	1,93E-01	6,49E-05	4,71E-06
Pb	6,39E-06	3,02E-03	1,64E-03	3,07E-05	1,59E-07	1,06E-07
As	0,00E+00	1,19E+01	1,15E+01	7,08E+00	1,60E-01	7,76E-08
H	0,00E+00	2,20E-09	2,20E-09	2,20E-09	2,20E-09	2,20E-09
O	0,00E+00	5,05E-01	5,00E-10	5,00E-10	5,00E-10	5,00E-10
Be	0,00E+00	2,35E+01	2,15E-10	2,15E-10	2,15E-10	2,15E-10
C	0,00E+00	8,10E-11	8,10E-11	8,10E-11	8,10E-11	8,10E-11
B	0,00E+00	1,42E+00	6,12E-11	6,12E-11	6,12E-11	6,12E-11
Ga	0,00E+00	3,36E+01	1,07E+01	2,96E+00	2,50E-03	4,10E-15
Mg	0,00E+00	5,72E-01	2,57E-01	1,08E-01	1,39E-04	1,16E-15
Al	0,00E+00	9,77E+00	1,84E-01	7,39E-02	9,52E-05	7,96E-16
V	1,62E-05	1,00E+02	1,53E-03	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
F	0,00E+00	2,15E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Ne	0,00E+00	5,95E-01	6,31E-24	6,31E-24	6,31E-24	0,00E+00
Si	0,00E+00	2,63E+00	7,93E-02	5,82E-04	1,70E-20	0,00E+00

Nach der Nennung der Elemente befindet sich in der ersten Spalte der Tabelle die natürliche spezifische Aktivität der Elemente. Dies ist beachtenswert, da besonders die Elemente der Metalle der Seltenen Erden hohe Neutronenabsorptionsquerschnitte aufweisen und somit durch eine Messung besonders stark aktiviert werden, jedoch diese Elemente in der natürlichen Isotopenverteilung bereits radioaktive Isotope

enthalten. Eine hohe natürliche Eigenaktivität haben die Elemente Rubidium (Rb: 916 Bq/g), Rhenium (Re: 889 Bq/g), Samarium (Sm: 124 Bq/g), Cer (Ce: 99 Bq/g), Lutetium (Lu: 65 Bq/g) und Kalium (K: 32 Bq/g).

Für die Aktivierungsanalyse und die Angabe der natürlichen spezifischen Eigenaktivität der Elemente Uran (U: 50 kBq/g) und Thorium (Th: 40 kBq/g) wurden die vor der Bestrahlung gebildeten Tochterradionuklide berücksichtigt. In der dritten Spalte der Tab. 8.8 wird die spezifische Aktivität aufgeführt, die durch die Bestrahlung mit einer Dauer von 16.000 Sekunden gemäß den Standardbestrahlungsparametern induziert wird. In den Spalten vier bis sieben wird die spezifische Aktivität nach Ende der Bestrahlung und verschiedenen Abklingzeiten angegeben. Die Elemente sind absteigend nach der maximalen Aktivität nach einer Abklinglagerung von einem Monat sortiert.

Aus den durchgeführten Aktivierungs- und Zerfallsanalysen kann abgeleitet werden, dass durch eine Messung zwar eine Aktivität induziert wird, diese jedoch schnell wieder zerfällt. So entstehen z. B. die höchsten spezifische Aktivitäten durch die Bestrahlung der Elemente Dysprosium mit $1{,}69 \cdot 10^{4}$ Bq/g, Europium mit $7{,}94 \cdot 10^{3}$ Bq/g oder Indium mit $6{,}69 \cdot 10^{4}$ Bq/g. Innerhalb von sieben Tagen sind diese spezifischen Aktivitäten jedoch auf $3{,}66 \cdot 10^{-4}$ Bq/g (Dy), $8{,}17 \cdot 10^{-1}$ Bq/g (Eu) und $2{,}56 \cdot 10^{-1}$ Bq/g (In) abgeklungen und somit nicht mehr relevant. Die spezifischen Aktivitäten liegen zu diesem Zeitpunkt bei Größenordnungen unterhalb der Freigrenzen der StrlSchV (Anlage III, Spalte 3). Die Elemente gelten nach einer individuellen Abklinglagerung nicht mehr als radioaktiv.

Nach einer Abklingzeit von 30 Tagen nach Ende der Bestrahlung sind die höchsten spezifischen Aktivitäten bei den Elementen Iridium (Ir), Scandium (Sc) und Thulium (Tm) festzustellen. Die induzierten spezifischen Aktivitäten betragen 2,9 Bq/g (^{192}Ir), 1,4 Bq/g (^{46}Sc) und 1,4 Bq/g (^{170}Tm). Diese Aktivitäten sind auf die Bildung der in den Klammern aufgeführten Aktivierungsprodukte zurückzuführen. Die Halbwertszeiten dieser Isotope betragen 74 Tage (^{192}Ir), 83,8 Tage (^{46}Sc) und 128,6 Tage (^{170}Tm). Die massenspezifischen Freigrenzen gemäß StrlSchV (Anlage III, Spalte 3) für diese Isotope betragen 10 Bq/g (^{192}Ir), 10 Bq/g (^{46}Sc) und 1000 Bq/g (^{170}Tm). Die durch eine Bestrahlung induzierte massenspezifische Aktivität der Elemente Scandium und Thulium ist nach einer Abklingzeit von weniger als einer Stunde unterhalb der genannten Freigrenzen, womit eine Probe, die die Elemente Scandium und Thulium enthält dann nicht mehr radioaktiv ist. Die massenspezifische Aktivität des Iridiums ist nach 41,5 Stunden so sehr abgeklungen, dass das Element nicht mehr als radioaktiv definiert wird. Iridium ist demnach das Element, das durch eine Messung die längste Residualaktivität aufweist, welche in weniger als zwei Tagen zerfallen ist. Der Anteil von Iridium in der kontinentalen Erdkruste beträgt nur 1 ppb. Das bedeutet, in einem Fass, gefüllt mit 200 kg Erdkruste, wären nur 0,2 mg Iridium enthalten. Im Regelfall ist die Wahrscheinlichkeit, dass Probematerial höhere Konzentrationen des wertvollen Iridiums enthält, äußerst gering.

Alle anderen analysierten Elemente sind wie Tab. 8.8 aufführt nach einer individuellen Abklingzeit im Bereich von wenigen Minuten bis Stunden nicht mehr radioaktiv bzw. sind es erst gar nicht durch die Bestrahlung geworden.

Auch die Bestrahlung der Kernbrennstoffe Uran und Thorium führt nicht zu relevanten induzierten Residualaktivitäten. Die durch die Bestrahlung induzierte Aktivität von Uran und Thorium beträgt durch die Bestrahlung 35 Bq/g und 58 Bq/g. Diese induzierte Aktivität setzt sich aus der Aktivität der gebildeten Aktivierungsprodukte und der Aktivität der bei der Spaltung von Uran- und Thoriumatomkernen gebildeten Spaltprodukte zusammen. Da das Neutronenspektrum innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer hochenergetischer ist als z. B. in einem Leistungsreaktor, unterscheidet sich die Spaltproduktverteilung von der, die sich bei der Nutzung von Kernbrennstoff in einem Leistungsreaktor ausbilden würde. Die Anzahl der gebildeten Spaltprodukte ist neben dem Neutronenspektrum hauptsächlich vom Neutronenfluss abhängig. In Forschungsreaktoren beträgt der thermische Neutronenfluss 10^{11} n $\cdot$ cm$^{-2}\cdot$s^{-1} bis 10^{15} n $\cdot$ cm$^{-2}\cdot$s^{-1}. In Leistungsreaktoren sind thermische Neutronenflüsse von 10^{13} n $\cdot$ cm$^{-2}\cdot$s^{-1} aufzufinden. Innerhalb der MEDINA-Testeinrichtung beträgt der thermische Neutronenfluss ca. $3 \cdot 10^{3}$ n $\cdot$ cm$^{-2}\cdot$s^{-1} und ist somit um den Faktor 33 Milliarden geringer. Zusätzlich wird der Kernbrennstoff diesem geringeren Neutronenfluss nur wenige Stunden ausgesetzt. Die höchsten spezifischen Aktivitäten der durch die Bestrahlung gebildeten Spaltprodukte des Urans sind in Tab. 8.9 aufgeführt.

Die isotopenspezifische Analyse der gebildeten Spaltprodukte durch die Bestrahlung von Uran zeigt, dass die massenspezifischen Aktivitäten der Spaltprodukte sehr gering sind und selbst direkt nach der Bestrahlung unterhalb der Freigrenzen der StrlSchV (Anlage III, Spalte 3) liegen. Die gebildeten Spaltprodukte gelten demnach nicht als radioaktiv.

Tab. 8.9: *Isotopenspezifische Analyse der gebildeten Spaltprodukte durch die Bestrahlung von Uran mit einer Dauer von 16.000 Sekunden gemäß Standardbestrahlungsparameter.*

Isotop	**Bestrahlung 16.000 s [Bq/g]**	**Zerfall 30 Tage [Bq/g]**	**Freigrenze [Bq/g]**
I-134	2,55E+00	0,00E+00	1,00E+01
Ba-139	1,92E+00	0,00E+00	1,00E+02
La-142	1,79E+00	0,00E+00	1,00E+01
Sr-92	1,51E+00	3,38E-05	1,00E+01
La-141	1,46E+00	0,00E+00	1,00E+02
Cs-138	1,42E+00	0,00E+00	1,00E+01
Te-134	1,19E+00	0,00E+00	1,00E+01
I-135	1,02E+00	0,00E+00	1,00E+01

Nach 30 Tagen Abklingzeit beträgt die neutroneninduzierte Aktivität von Uran und Thorium noch 0,07 Bq/g und 0,2 Bq/g. Stellt man diese Werte der natürlichen spezifischen Aktivität bei Uran mit 50 kBq/g und Thorium mit 40 kBq/g gegenüber, kann zusammenfassend festgestellt werden, dass auch bei Kernbrennstoffen die durch die Messung induzierte Aktivität durch Aktivierung, Kernspaltung oder

weitere Kernreaktionen vernachlässigbar ist. Resultierend wird bei MEDINA nur eine sehr geringe und kurzeitige Aktivität erzeugt, da sowohl der Neutronenfluss als auch die Bestrahlungszeit niedrig sind. Eine Zunahme der Aktivität durch das Analyseverfahren ist vernachlässigbar. Eine zusätzliche Berücksichtigung von durch die Messung gebildeten Radionukliden oder Aktivitäten ist bei einer stofflichen oder radiologischen Deklaration nicht erforderlich.

Kapitel 9

Gamma-Signaturen ausgewählter Elemente

Zusammenfassung

Die Bestrahlung und gammaspektrometrische Messung von einzelnen Elementen mit der MEDINA-Anlage ermöglicht die Aufnahme der für das Element jeweiligen charakteristischen Gamma-Signatur. Die Übergangswahrscheinlichkeiten für die Emissionen prompter oder verzögerter Gamma-Quanten eines Elements, induziert durch einen Neutroneneinfang, sind zwar bekannt und tabelliert. Die innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer aufgenommenen stoffspezifischen Gamma-Signaturen berücksichtigen jedoch zusätzlich, welche Gamma-Quanten aus dem aktiven Untergrund besonders hervortreten, interferenzfrei sind, und somit für einen qualitativen Nachweis und hierauf aufbauend für eine quantitative Massenbestimmung bei einer Aktivierungsanalyse geeignet sind. Es wurden Gamma-Signaturen aus zwei Kategorien von Stoffen aufgenommen. Erstens Stoffe, die als Beiprodukt in radioaktiven Abfällen zu erwarten sind. Als Beiprodukte wurden die Elemente Aluminium, Kupfer, Zirkonium und Tantal gewählt. Zum zweiten wurden Stoffe analysiert, die Leitsubstanzen für eine Wassergefährdung darstellen. Leitsubstanzen sind relevante Elemente bzw. Einzelstoffe, anhand derer eine Wassergefährdung abgeleitet werden kann. Die untersuchten wassergefährdenden Leitsubstanzen waren die Elemente Beryllium, Arsen, Selen und Quecksilber.

9.1 Gamma-Signaturen von Beiprodukten in radioaktiven Abfällen

9.1.1 Aluminium

Aluminium ist ein relevantes Beiprodukt in radioaktiven Abfällen, weil es sowohl mit Säuren als auch mit Laugen unter Entwicklung von Wasserstoff reagiert. Kommt Aluminium in Kontakt mit frischem Beton, welcher stark basisch ist, korrodiert es langfristig unter einer nicht zu vernachlässigenden Gasbildung. Die Gasentwicklung einer Wasserstoff- oder Sauerstoffkorrosion kann zu einem Druckaufbau im Abfallbehälter führen. Bei einer langfristigen Lagerung solcher Abfälle kam es somit in Einzelfällen zu einem Aufblähen von 200-l-Fässern und dadurch bedingt zu einem Bersten der Fässer kommen. Aus diesem Grund werden heute Fässer mit radioaktiven Abfällen mit druckentlastenden Komponenten im Fassdeckel (Sintermetallfilter) versehen.

Der Beschreibungsschwellenwert des Elements Aluminium beträgt im Endlagerungsverfahren Konrad 1 % der Bruttoabfallgebindemasse. Da von dem Element keine Wassergefährdung ausgeht, ist es bei der Endlagerung seitens des BfS nicht deklarationspflichtig /2-4/.



Abb. 9.1: *Aluminiumprobe in der MEDINA-Bestrahlungskammer zur Aufnahme der charakteristischen Gamma-Signatur.*

Zur Aufnahme der Gamma-Signatur von Aluminium wurde eine metallische Aluminiumprobe mit einer Masse von 1213 g in die MEDINA-Bestrahlungskammer gestellt (siehe Abb. 9.1) und ein Spektrum gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen. Der Schwerpunkt der Aluminiumprobe befand sich auf der Höhe des Detektors und war 25 cm von der Detektorfrontfläche entfernt. Das Gamma-Spektrum wurde mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet. Die registrierten prompten und verzögerten Gamma-Quanten von Aluminium, induziert durch eine Neutronen-Aktivierung, sind mit den entsprechenden Nettopeakflächen und Zählraten in Tab. 9.1 aufgeführt.

Tab. 9.1: *Prompte und verzögerte Gamma-Quanten einer Aluminiumprobe (1213 g), induziert durch die Aktivierung mit thermischen, epithermischen und schnellen Neutronen. Das Spektrum wurde gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen.*

Isotop	$\sigma(E_\gamma)$ [barn]	γ-Energie [keV]	Nettopeakfläche [#]	Fehler [%]	Zählrate [s^{-1}]	Bemerkung/ Herkunft
^{28}Al	0,232	1778,9	39437	4,47	21,20	verzögert
^{27}Al	0,0493	7724,0	3037	4,93	1,63	prompt
^{27}Al	0,0179	3033,9	3287	13,07	1,77	prompt
^{27}Al	0,0153	4259,5	2288	12,78	1,23	prompt
^{27}Al	0,0149	4133,4	1684	14,39	0,91	prompt
^{27}Al	0,0146	3465,1	1523	16,17	0,82	prompt
^{27}Al	0,0126	4733,8	1627	11,34	0,87	prompt
^{27}Al	0,0109	4690,7	2164	12,18	1,16	prompt
^{27}Al	0,0100	3591,2	1311	19,17	0,71	prompt
^{27}Al	0,0081	7693,4	488	15,17	0,26	prompt
^{27}Mg	0,0023	1014,4	204	20,2	0,11	verzögert ^{28}Al(n,p)^{27}Mg
^{1}H	0,3326	2223,2	129298	2,23	69,52	prompt
^{12}C	0,00261	4945,3	88447	1,17	47,55	prompt
^{12}C	0,00122	3683,9	48188	1,99	25,91	prompt
^{16}N	0,0274	6128,6	2099	7,30	1,13	verzögert ^{16}O(n,p)^{16}N

Das Element Aluminium besteht alleinig aus dem stabilen Isotop ^{27}Al. Der Wirkungsquerschnitt von Aluminium für die Absorption thermischer Neutronen beträgt 0,231 b ± 0,003 b und das Resonanzintegral 0,123 b± 0,01 b. Durch eine Neutronen-Aktivierung entsteht ^{28}Al, welches mit einer Halbwertszeit von 2,241 Minuten unter der Emission von Beta-Teilchen mit einer maximalen Energie von 2863 keV und Gamma-Quanten mit einer Energie von 1778,9 keV zerfällt. Die Wahrscheinlichkeit der Emission der Beta-Teilchen und der Gamma-Quanten beträgt 100 %. Der partielle Wirkungsquerschnitt für die Emission dieser verzögerten Gamma-Quanten ist größer als die partiellen Wirkungsquerschnitte für die prompten Gamma-Emissionen und beträgt 0,232 b. Die kurze Halbwertszeit des Aktivierungsprodukts führt dazu, dass sich bei einer Neutronenbestrahlung nach ca. 22 Minuten die Sättigungsaktivität des ^{28}Al aufgebaut hat. In Folge des partiellen Wirkungsquerschnittes und der kurzen Halbwertszeit wird bei der Messung der Aluminiumprobe bei 1778,9 keV mit 22,2 s^{-1} die höchste Zählrate bestimmt.

Beachtenswert ist, dass die Gamma-Quanten mit einer Energie von 1778,9 keV auch durch die Kernreaktion ^{28}Si(n,p)^{28}Al emittiert werden. Für eine Analyse der Netto-Peakfläche bei einer Energie von

1778,9 keV muss zur eindeutigen Bestimmung von Aluminium demnach eine Interferenz durch diese Kernreaktion bzw. vorhandenes Silizium in der Probe oder der Bestrahlungskammer subtrahiert werden.

Mit Aluminiumkernen wechselwirkende schnelle Neutronen induzieren die Kernreaktionen $^{27}Al(n,p)^{27}Mg$ und $^{27}Al(n,\alpha)^{24}Na$. ^{27}Mg zerfällt mit einer Halbwertszeit von 9,458 Minuten und ^{24}Na mit einer Halbwertszeit von 14,959 Stunden. Im Spektrum sind diese Kernreaktionen z. B. durch die verzögerten Gamma-Quanten bei den Energien 843,7 keV und 1014,4 keV festzustellen, welche beim Beta-Zerfall des ^{27}Mg emittiert werden. Die Wirkungsquerschnitte dieser Kernreaktionen mit schnellen Neutronen sind jedoch zu niedrig, um hieran eine präzise Quantifizierung der Elementmasse durchzuführen.

Im MEDINA-Messverfahren sind zum qualitativen Nachweis sowie für eine quantitative Bestimmung des Elements Aluminium die prompten Gamma-Quanten mit einer Energie von 3033,9 keV und 7724,0 keV geeignet. Obwohl der partielle Wirkungsquerschnitt bei dem hochenergetischeren Gamma-Quant mit 0,0493 b größer ist als bei 3033,9 keV, welche einen partiellen Wirkungsquerschnitt von nur 0,0179 b aufweist, werden für beide Gamma-Quanten mit 1,63 s^{-1} und 1,77 s^{-1} vergleichbare Zählraten bestimmt. Begründet ist dies dadurch, dass die Effizienz des Spektrometers zum Nachweis der Gamma-Quanten mit einer Energie von 7724,0 keV geringer ist als bei 3033,9 keV. Der Vorteil der 7724,0 keV Photonen ist, dass diese hochenergetischen prompten Gamma-Quanten in der Probe selbst, einer Matrix oder abschirmenden Strukturen weniger absorbiert werden. Weiterhin liegt bei dieser Energie ein günstiges Peak zu Untergrundverhältnis vor.

Die in Tab. 9.1 aufgeführten Zählraten der prompten Gamma-Quanten von Wasserstoff, Kohlenstoff und Stickstoff resultieren aus der Aktivierung der Bestrahlungskammer (aktives Untergrundspektrum). Die Zählraten werden bei sämtlichen Aufnahmen einer Gamma-Signatur als Vergleichswerte bestimmt, um die Gleichheit der Standardbestrahlungs- und Messparametern zu verifizieren.

9.1.2 Kupfer

Beim Rückbau kerntechnischer Anlagen fallen große Mengen an Kupfer in Form von Kabeln oder elektronischen Komponenten an. Kann der Nachweis erbracht werden, dass die Aktivität dieser Reststoffe unterhalb der durch die StrlSchV definierten Freigrenzen ist, können die Reststoffe ggf. uneingeschränkt freigegeben und somit der Wertstoff konventionell recycelt werden /9-2/.

Gemäß den Endlagerungsbedingungen Konrad beträgt der Beschreibungsschwellenwert des Elements Kupfer 1 % der Bruttoabfallgebindemasse. Da von dem Element keine Wassergefährdung ausgeht, ist es bei der Endlagerung nicht deklarationspflichtig /2-4/.

Zur Aufnahme der charakteristischen Gamma-Signatur des Elements Kupfer wurde, ähnlich der Positionierung der Aluminiumprobe, eine metallische Kupferprobe mit einer Masse von 1125 g in die MEDINA-Bestrahlungskammer gestellt und ein Spektrum gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen. Der Schwerpunkt der Kupferprobe befand sich auf der Höhe des

Detektors und war 25 cm von der Detektorfrontfläche entfernt. Das Gamma-Spektrum wurde bzgl. der nachgewiesenen Gamma-Quanten mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet. Die registrierten prompten Gamma-Quanten von Kupfer induziert durch eine Neutronen-Aktivierung sind mit den entsprechenden Nettopeakflächen und Zählraten in Tab. 9.2 aufgeführt.

Tab. 9.2: *Prompte Gamma-Quanten einer Kupferprobe (1125 g) induziert durch die Aktivierung mit thermischen und epithermischen Neutronen. Das Spektrum wurde gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen.*

Isotop	**$\sigma(E_\gamma)$ [barn]**	**γ-Energie [keV]**	**Netto-Peakfläche [#]**	**Fehler [%]**	**Zählrate [s^{-1}]**	**Herkunft/ Bemerkung**
^{63}Cu	0,893	278,3	43825,4	9,39	23,56	prompt
^{63}Cu	0,869	7915,6	6846,3	3,58	3,68	prompt
^{63}Cu	0,648	159,3	36020,0	9,43	19,37	prompt
^{63}Cu	0,540	7637,4	3537,9	5,21	1,90	prompt
^{63}Cu	0,321	7306,9	2560,4	7,40	1,38	prompt
^{63}Cu	0,270	608,8	11858,7	10,76	6,38	prompt
^{63}Cu	0,215	343,9	11688,5	10,58	6,28	prompt
^{63}Cu	0,150	7253,0	1366,4	10,69	0,73	prompt
^{63}Cu	0,135	465,1	7207,5	13,84	3,88	prompt
^{63}Cu	0,131	385,8	11218,5	15,04	6,03	prompt
^{63}Cu	0,126	6988,7	1625,5	13,12	0,87	prompt
^{63}Cu	0,102	648,8	3629,9	15,57	1,95	prompt
^{63}Cu	0,0925	7176,7	870,4	19,05	0,47	prompt
^{63}Cu	0,0898	579,8	5021,8	13,64	2,70	prompt
^{1}H	0,3326	2223,2	128896,8	2,42	69,30	prompt
^{12}C	0,00261	4945,3	88543,7	1,53	47,60	prompt
^{12}C	0,00122	3683,9	46577,3	2,00	25,04	prompt
^{16}N	0,0274	6128,6	1888,3	9,10	1,02	verzögert ^{16}O(n,p)^{16}N

Das Element Kupfer besteht aus den stabilen Isotopen ^{63}Cu (69,15 %) und ^{65}Cu (30,85 %). Die isotopenspezifischen Wirkungsquerschnitte von Kupfer für die Absorption thermischer Neutronen betragen 4,52 b ± 0,02 b (^{63}Cu) und 2,17 b± 0,03 b (^{65}Cu) und die Resonanzintegrale 4,97 b ± 0,08 b (^{63}Cu) und 2,19 b ± 0,07 b (^{65}Cu).

Durch eine Neutronen-Aktivierung entsteht das Radionuklid ^{66}Cu, welches mit einer Halbwertszeit von 5,12 Minuten unter der Emission von Beta-Teilchen mit einer maximalen Energie von 2642 keV und Gamma-Quanten mit einer Energie von 1039,2 keV zerfällt. Eine Neutronenbestrahlung im Zeitbereich von Stunden führt zur Bildung der Radionuklide ^{64}Cu ($T_{1/2}$ = 12,6 h) und ^{66}Cu ($T_{1/2}$ = 9,12 m). Aufgrund der kurzen Bestrahlungszeit ist die Bildung von ^{64}Cu sehr gering, bei dem Aktivierungsprodukt ^{66}Cu bildet sich jedoch die Sättigungsaktivität. Der partielle Wirkungsquerschnitt für beim Zerfall emittierte Gamma-Quanten beträgt jedoch nur 0,0598 b, weswegen diese Gamma-Linie für einen Nachweis von Kupfer ungünstig ist.

Zum qualitativen Nachweis und für eine quantitative Bestimmung des Elements Kupfer ist innerhalb von MEDINA alleinig das Isotop ^{63}Cu geeignet, da es die größeren partiellen Wirkungsquerschnitte für eine Prompt-Gamma-Produktion aufweist. Das Isotop lässt sich anhand der durch thermische bzw. epithermische Neutronen induzierten Prompt-Gamma-Quanten mit einer Energie von 278,3 keV und 159,3 keV nachweisen. Für diese Gamma-Quanten wurden mittels des aufgenommen Spektrums Zählraten von 23,56 s^{-1} und 19,37 s^{-1} bestimmt. Da die beiden Gamma-Quanten niederenergetisch sind, ist es sinnvoll für eine Analyse auch hochenergetische Gamma-Quanten von Kupfer zu berücksichtigen, da hochenergetische Gamma-Quanten durch abschirmende Strukturen oder Matrixeffekte weniger abgeschirmt werden. Als hochenergetische Gamma-Quanten bieten sich die Gamma-Quanten mit einer Energie von 7915,6 keV, 7637,4 keV und 7306,9 keV an. Bei gleichzeitiger Anwesenheit von Eisen weist die Gamma-Linie bei 7637,4 keV eine Interferenz mit Eisen auf. Eisen emittiert bei einer Neutronen-Aktivierung prompte Gamma-Quanten mit einer Energie von 7631,1 keV und 7645,5 keV. Das beim Kupfer genannte prompte Gamma-Quant liegt mit seiner Energie genau zwischen diesen Gamma-Quanten des Eisens, weswegen diese Gamma-Linie nur eingeschränkt aufgelöst werden kann. Die Möglichkeit der Auflösung der Gamma-Linien ist von den aktivierten Massen von Eisen und Kupfer bzw. der aus der Aktivierung nachgewiesenen Gamma-Quanten abhängig.

Die in Tab. 9.2 aufgeführten Zählraten der prompten Gamma-Quanten von Wasserstoff, Kohlenstoff und Stickstoff resultieren aus der Aktivierung der Bestrahlungskammer und verifizieren die Standardbestrahlungs- und Messparameter. Es sind keine signifikanten Abweichungen zur Messung der Gamma-Signatur des Aluminiums erkennbar.

9.1.3 Zirkonium

In der Kerntechnik hat Zirkonium aufgrund seines besonders geringen mikroskopischen Einfangquerschnitts für thermische Neutronen von nur 0,185 b eine besondere Bedeutung. Zirkalloy, eine Legierung, die aus ca. 90 % Zirconium und geringen Anteilen an Zinn, Eisen, Chrom oder Nickel besteht, wird aufgrund der geringen Aktivierbarkeit und der günstigen Neutronenökonomie für die Hüllröhre der Brennstäbe eines Kernreaktors oder für Strukturelemente im Reaktordruckbehälter verwendet. Der Werkstoff hat neben seinen neutronenphysikalischen Vorteilen ebenfalls den Vorteil der besonderen Korrosionsresistenz und wird auch im chemischen Apparatebau eingesetzt. Zirkonium gilt als nur wenig toxisch auf den menschlichen Organismus und stellt keine bekannte wesentliche Gefahr für die Umwelt dar. Im Endlagerungsverfahren Konrad beträgt der Beschreibungsschwellenwert von Zirkalloy 1 % der Bruttoabfallgebindemasse. Der Deklarationsschwellenwert von Zirkalloylegierungen ist 68,8 % /2-4/.

Zur Aufnahme der charakteristischen Gamma-Signatur des Elements Zirkonium wurde, ähnlich der Positionierung der Aluminiumprobe, eine Probemasse von 1000 g Zirkoniumoxid (ZrO_2) in die MEDINA-Bestrahlungskammer gestellt und ein Spektrum gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen. Der Schwerpunkt der Zirkoniumprobe befand sich auf der Höhe des Detektors und war 25 cm von der Detektorfrontfläche entfernt. Das Gamma-Spektrum wurde mit der Spektroskopie-Software

GAMMA-W ausgewertet. Die registrierten prompten Gamma-Quanten von Zirkonium induziert durch eine Neutronen-Aktivierung sind mit den entsprechenden Nettopeakflächen und Zählraten in Tab. 9.3 aufgeführt.

Tab. 9.3: *Prompte Gamma-Quanten einer Zirkoniumoxidprobe (1000 g) induziert durch die Aktivierung mit thermischen und epithermischen Neutronen. Das Spektrum wurde gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen.*

Isotop	**$\sigma(E_\gamma)$ [barn]**	**γ-Energie [keV]**	**Netto-Peakfläche [#]**	**Fehler [%]**	**Zählrate [s^{-1}]**	**Herkunft/ Bemerkung**
^{91}Zr	0,125	934,5	3433	11,4	1,85	Interf. ^{35}Cl 937,5 keV
^{90}Zr	0,063	1465,7	1273	26,0	0,68	prompt
^{90}Zr	0,042	1205,6	871	17,9	0,47	Interf. DE ^{1}H 2223,2 keV
^{91}Zr	0,030	1405,2	622	25,5	0,33	prompt
^{1}H	0,3326	2223,2	147998	3,2	79,57	prompt
^{12}C	0,00261	4945,3	88839	1,4	47,76	prompt
^{12}C	0,00122	3683,9	49582	1,6	26,66	prompt
^{16}N	0,0274	6128,6	1734	8,6	0,93	verzögert ^{16}O(n,p)^{16}N

Das Element Zirkonium besteht aus den stabilen Isotopen ^{90}Zr, ^{91}Zr, ^{92}Zr, ^{94}Zr und ^{96}Zr. Die Isotopenhäufigkeiten und isotopenspezifische Nukleardaten von Zirkonium sind in Tab. 9.4 aufgeführt.

Tab. 9.4: *Kernphysikalische Daten für eine Neutronen-Aktivierungs-Analyse von Zirkonium (Daten: INDC(NDS)-440)*

Isotop	**Isotopen-häufigkeit [%]**	**σ_{th} [barn]**	**Resonanz-integral σ_{epi} [barn]**	**Aktivierungs-produkt**	**Halbwertszeit Aktivierungsprodukt**
Zr	nat.	0,196 ±0,003	1,008 ±0,02	^{93}Zr, ^{95}Zr, ^{97}Zr	
^{90}Zr	51,452	0,011 ±0,005	0,13 ±0,02	^{91}Zr	stabil
^{91}Zr	11,223	1,24 ±0,25	5,2 ±0,7	^{92}Zr	stabil
^{92}Zr	17,146	0,220 ±0,060	0,63 ±0,02	^{93}Zr	$1{,}53 \cdot 10^6$ y
^{94}Zr	17,380	0,0499 ±0,0024	0,27 ±0,03	^{95}Zr	62,02 d
^{96}Zr	2,799	0,020 ±0,001	5,6 ±0,2	^{97}Zr	16,8 h

Aufgrund von Resonanzen ist die Wahrscheinlichkeit von im natürlichen Isotopenverhältnis vorliegenden Zirkonium für einen Einfang von Neutronen in einem Energiebereich von 0,5 eV bis 10 MeV (Resonanzintegral beträgt 1,008 b) größer als für einen Einfang thermischer Neutronen (0,196 b). Durch eine Neutronen-Aktivierung entstehen die Radionuklide ^{93}Zr, ^{95}Zr und ^{97}Zr, welche mit den Halbwertszeiten von $1{,}53 \cdot 10^6$ Jahren, 62,02 Tagen und 16,8 Stunden zerfallen. Eine Neutronenbestrahlung im Zeitbereich von mehreren Stunden führt nur zu einer nennenswerten Bildung des Aktivierungsprodukts ^{97}Zr. Für einen Nachweis von Zirkonium mit MEDINA ist ^{97}Zr aufgrund der geringen partiellen Wirkungsquerschnitte für eine verzögerte Gamma-Emission nicht geeignet.

Zum qualitativen Nachweis sowie für eine quantitative Bestimmung des Elements Zirkonium sind für MEDINA die Isotope ^{90}Zr und ^{91}Zr geeignet. ^{91}Zr lässt sich anhand der prompten Gamma-Quanten mit

einer Energie von 934,5 keV und ^{90}Zr anhand der Prompt-Gamma-Quanten mit einer Energie von 1465,7 keV nachweisen. Beide Prompt-Gamma-Quanten werden durch thermische bzw. epithermische Neutronen induziert. Bei den von Zirkonium emittierten Prompt-Gamma-Quanten mit einer Energie von 1880,4 keV beträgt der partielle Wirkungsquerschnitt 0,016 b und es besteht eine Interferenz mit den prompten Gamma-Quanten aus der Aktivierung von ^{14}N, weswegen diese Gamma-Linie mit Sorgfalt berücksichtigt werden muss.

Die in Tab. 9.3 aufgeführten Zählraten der prompten Gamma-Quanten von Wasserstoff, Kohlenstoff und Stickstoff resultieren aus der Aktivierung der Bestrahlungskammer und verifizieren die Standardbestrahlungs- und Messparameter. Im Vergleich zu der Aufnahme der Gamma-Signatur von Aluminium und Kupfer wurde bei der Messung der Zirkoniumprobe eine um ca. 15 % höhere Zählrate von den Prompt-Gamma-Quanten von Wasserstoff registriert. Diese erhöhte Zählrate resultiert aus dem geringen Absorptionsquerschnitt des Zirkoniums für thermische Neutronen in Kombination mit dem hohen Streuquerschnitt für thermische Neutronen von 6,46 b. Diese kernphysikalischen Eigenschaften haben zur Folge, dass in die Probe eintretende Neutronen mit einer geringen Wahrscheinlichkeit absorbiert und mit einer hohen Wahrscheinlichkeit zurückgestreut werden. Aus der Probe gestreute Neutronen werden aufgrund des Raumwinkels zwischen Probe und CFK-Stützbalken mit einer hohen Wahrscheinlichkeit in den CFK-Stützbalken gestreut. Somit ist der CFK-Balken einem höheren thermischen Neutronenfluss ausgesetzt, welches zu einer höheren Emission der Prompt-Gamma-Quanten von Wasserstoff führt. Der CFK-Balken enthält eine hohe Konzentration Wasserstoff. Dieser Effekt ist ebenfalls bei den Gamma-Signaturen von Beryllium und Quecksilber festzustellen.

9.1.4 Tantal

Tantal ist ein grauglänzendes, sehr hartes, dehnbares Schwermetall aus der Vanadingruppe. Es ist gut verform- und schweißbar. Tantal zählt zu den hochschmelzenden Metallen, besitzt eine ausgezeichnete Resistenz im Kontakt mit aggressiven Medien wie z. B. Säuren (außer Flusssäure) oder Salzschmelzen. Es hat eine hohe Absorptionsfähigkeit für Wasserstoff und Stickstoff. Diese Materialeigenschaften machen es zu einem Legierungsbestandteil für Anlagenkomponenten in der Elektro-, Chemie- und Kerntechnik. In der Kerntechnik werden Legierungen mit höheren Tantalkonzentrationen z. B. für die Beschichtung von Rohrleitungen, die flüssiges Natrium transportieren, verwendet. Bei Flüssigsalzreaktoren (engl.: Molten Salt Reactor, MSR), bei denen der Kernbrennstoff in Form geschmolzenen Salzes vorliegt, hätten Tantal-Werkstoffe mit ihren hochwarmfesten und korrosionsfesten Eigenschaften eine große Bedeutung. Die Verwendung von Tantal als Spallationstarget ist ebenfalls möglich /9-3/.

Zur Aufnahme der Gamma-Signatur von Tantal wurde ein metallischer Tantalstab mit einer Masse von 1181 g in die Bestrahlungskammer gestellt und ein Spektrum gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen (siehe Abb. 9.2).

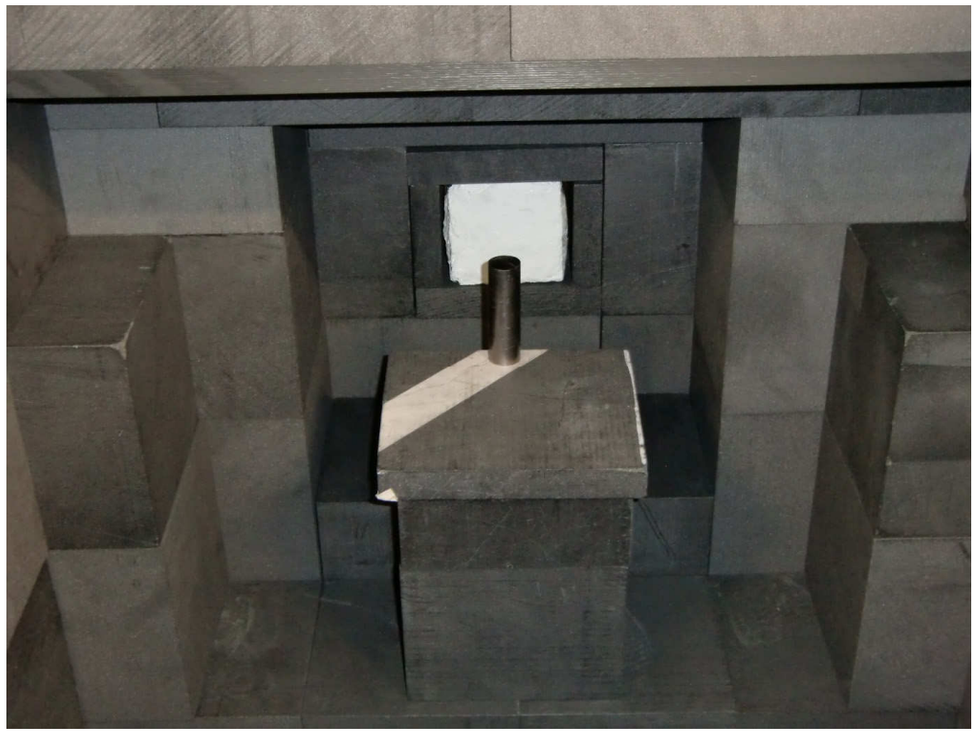


Abb. 9.2: *Tantalprobe innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer zur Aufnahme der charakteristischen Gamma-Signatur.*

Der Schwerpunkt der Tantalprobe befand sich auf der Höhe des Detektors und war 25 cm von der Detektorfrontfläche entfernt. Das Gamma-Spektrum wurde mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet. Die registrierten prompten Gamma-Quanten von Tantal induziert durch eine Neutronen-Aktivierung sind mit den entsprechenden Nettopeakflächen und Zählraten in Tab. 9.5 aufgeführt.

Tab. 9.5: *Prompte Gamma-Quanten einer Tantalprobe (1181 g) induziert durch die Aktivierung mit thermischen und epithermischen Neutronen. Das Spektrum wurde gemäß Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen.*

Isotop	**$\sigma(E_\gamma)$ [barn]**	**γ-Energie [keV]**	**Netto-Peakfläche**	**Fehler [%]**	**Zählrate [s^{-1}]**	**Herkunft/ Bemerkung**
^{181}Ta	2,60	270,4	16192	11,09	8,71	prompt
^{181}Ta	1,18	402,6	10330	12,22	5,55	prompt
^{181}Ta	0,138	5964,9	852	15,42	0,46	prompt
^{1}H	0,3326	2223,2	127121	2,38	68,34	prompt
^{12}C	0,00261	4945,3	87027	1,57	46,79	prompt
^{12}C	0,00122	3683,9	45731	2,22	24,59	prompt
^{16}N	0,0274	6128,6	2031	8,36	1,09	verzögert ^{16}O(n,p)^{16}N

Das Element Tantal besteht aus den Isotopen ^{180}Ta (0,012 %) und ^{181}Ta (99,988 %). Die isotopenspezifischen Wirkungsquerschnitte von Tantal für die Absorption thermischer Neutronen betragen 563 b ± 60 b (^{180}Ta) und 20,5 b ± 0,5 b (^{181}Ta) und die Resonanzintegrale 1349 b ± 100 b (^{180}Ta) und 660 b ± 23 b (^{181}Ta).

Durch eine Neutronen-Aktivierung entsteht das Radionuklid ^{182}Ta, welches mit einer Halbwertszeit von 114,43 Tagen unter der Emission von Beta-Teilchen mit einer maximalen Energie von 1713 keV und zahlreichen Gamma-Quanten zerfällt. Eine Neutronenbestrahlung im Zeitbereich von mehreren Stunden führt nicht zu einer für eine Analyse verwendbaren Bildung des Aktivierungsprodukts ^{182}Ta.

Das Isotop ^{181}Ta lässt sich im MEDINA-Messverfahren anhand der durch thermische bzw. epithermische Neutronen induzierten prompten Gamma-Quanten mit einer Energie von 270,4 keV, 402,6 keV und 5964,9 keV nachweisen. Bei den genannten Gamma-Energien wurden Zählraten von 8,71 s^{-1}, 5,55 s^{-1} und 0,46 s^{-1} bestimmt. Die Analyse der nieder- und hochenergetischen Gamma-Quanten ist zielführend, da hochenergetische Gamma-Quanten durch Selbstabsorption, abschirmende Strukturen oder Matrixeffekte weniger abgeschirmt werden. Dies ist besonders bei einer Analyse von Tantal-Werkstoffen relevant, da Tantal mit 16,65 g/cm^3 eine sehr hohe Dichte aufweist, welche sogar noch 47 % größer als die von Blei ist.

Die in Tab. 9.4 aufgeführten Zählraten der prompten Gamma-Quanten von Wasserstoff, Kohlenstoff und Stickstoff resultieren aus der Aktivierung der Bestrahlungskammer und erlauben die Verifikation der Standardbestrahlungs- und Messparameter. Es sind keine signifikanten Abweichungen zur Messung der Gamma-Signatur von Aluminium und Kupfer erkennbar.

9.2 Gamma-Signaturen von wassergefährdenden Leitsubstanzen

9.2.1 Beryllium

Beryllium ist ein silberweißes, hartes Erdalkalimetall, welches in verdünnten Säuren und konzentrierten Alkalien löslich ist. Beryllium ist giftig für Wasserorganismen und Berylliumverbindungen können in Gewässern längerfristig schädliche Wirkungen haben. Es ist gemäß Verwaltungsvorschrift wassergefährdende Stoffe (VwVwS) in die Wassergefährdungsklasse 3 als stark wassergefährdender Stoff eingestuft /2-19/. Dies führt dazu, dass der Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwert von elementarem Beryllium im Endlagerungsverfahren Konrad nur 0,1 % der Bruttoabfallgebindemasse beträgt /2-4/. Im Abwasser treten i.d.R. sehr geringe Konzentrationen von Berylliumverbindungen auf, für die keine gesonderte Reinigung vorgesehen ist. Für die Aufbereitung von Trinkwasser hingegen können mögliche Verunreinigungen durch Berylliumverbindungen mit Filtrationsmethoden, Destillation oder der Elektrodialyse entfernt werden. Beryllium ist in der Kerntechnik aufgrund seiner neutronenphysikalischen Eigenschaften ein äußerst potenter Neutronenmoderator und Neutronenreflektor. Der Werkstoff ist in

Abhängigkeit der Neutronenenergie ebenfalls ein Neutronenmultiplikator. Diese Fähigkeiten machen Beryllium attraktiv für die Anwendung in zukünftigen Fusionsreaktoren wie z. B. dem Internationale Thermonukleare Experimental-Reaktor (ITER), der sich in Cadarache (Südfrankreich) im Bau befindet. Das Element Beryllium besteht alleinig aus dem Isotop ^{9}Be und hat einen sehr geringen makroskopischen Einfangquerschnitt für thermische Neutronen von nur 0,0088 b. Dieser Wirkungsquerschnitt ist noch ca. 21 Mal geringer als der des ebenfalls neutronenphysikalisch relevanten Zirkoniums mit 0,185 b. Aufgrund des niedrigen Einfangquerschnitts für Neutronen ist die Neutronen-Aktivierungs-Analyse von Beryllium eine Herausforderung. Zur Aufnahme der Gamma-Signatur muss zwangsläufig eine ausreichende Elementmasse bestrahlt werden.

Für den Versuch wurden zwei metallische Berylliumscheiben mit einer Gesamtmasse von 7291 g (siehe Abb. 9.3) in die Bestrahlungskammer gestellt und ein Spektrum gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen. Der Schwerpunkt der Berylliumscheiben befand sich auf der Höhe des Detektors und war 30 cm von der Detektorfrontfläche entfernt. Aufgrund einer schwachen Kontamination der Berylliumscheiben mit ^{137}Cs wurden die Scheiben in einer Schutzfolie bestrahlt (siehe Abb. 9.4) Das Gamma-Spektrum wurde mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet. Die registrierten prompten Gamma-Quanten von Beryllium, induziert durch eine Neutronen-Aktivierung, sind mit den entsprechenden Nettopeakflächen und Zählraten in Tab. 9.6 aufgeführt.

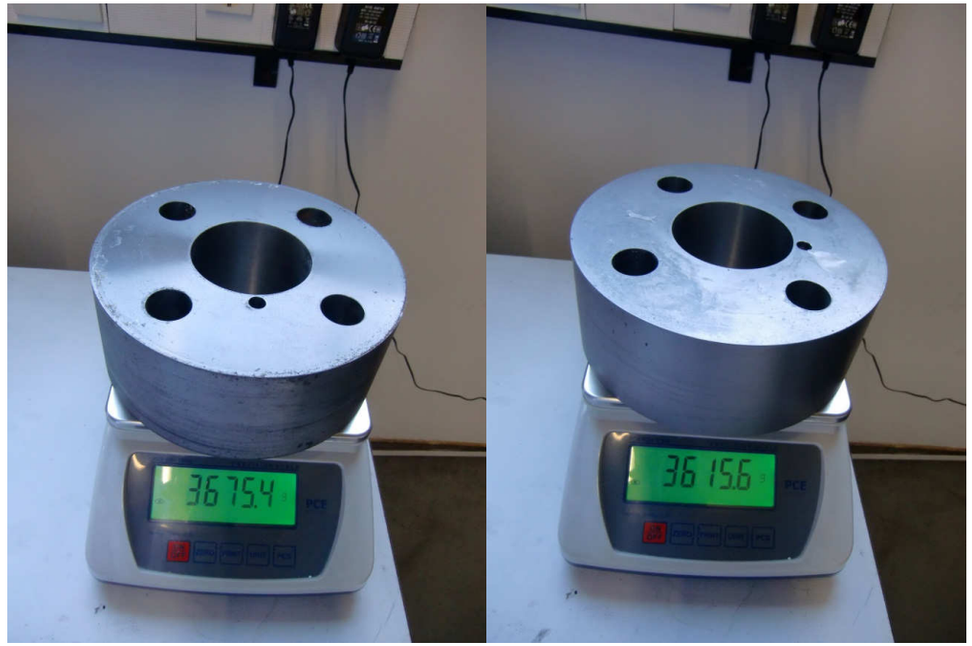


Abb. 9.3: *Massenbestimmung der Berylliumprobe.*



Abb. 9.4: *Berylliumprobe innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer zur Aufnahme der charakteristischen Gamma-Signatur.*

Beryllium hat mit ^{9}Be nur ein stabiles Isotop. Der Wirkungsquerschnitt von Beryllium für die Absorption thermischer Neutronen beträgt 8,49 mb ± 0,35 mb und das Resonanzintegral 3,82 mb. Durch eine Neutronen-Aktivierung entsteht ^{10}Be, welches mit einer Halbwertszeit von $1{,}51 \cdot 10^{6}$ Jahren unter der Emission von Beta-Teilchen mit einer Energie von 556 keV zerfällt. Bei diesem Zerfall werden keine Gamma-Quanten emittiert. Eine Neutronenbestrahlung im Zeitbereich von mehreren Stunden führt nicht zu einer nachweisbaren Bildung des Aktivierungsprodukts ^{10}Be.

Im MEDINA-Messverfahren lässt sich Beryllium anhand der durch thermische sowie epithermische Neutronen induzierten prompten Gamma-Quanten mit einer Energie von 3367,4 keV und 6809,6 keV nachweisen. Hierbei wurden Zählraten von 2,29 s^{-1} und 1,88 s^{-1} bestimmt. Bei der Analyse der Nettopeakfläche zum Nachweis der 6809,6 keV Photonen sind mögliche Interferenzen mit den Prompt-Gamma-Quanten von ^{75}As zu berücksichtigen. Arsen emittiert Gamma-Quanten mit einer Energie von 6808,8 keV und 6810,9 keV (siehe Tab. 9.7), die einen quantitativen Nachweis von Beryllium erschweren können.

Tab. 9.6: *Prompte Gamma-Quanten einer Berylliumprobe (7291 g) induziert durch die Aktivierung mit thermischen und epithermischen Neutronen. Das Spektrum wurde gemäß Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen.*

Isotop	$\sigma(E_\gamma)$ [barn]	γ-Energie [keV]	Netto-Peakfläche	Fehler [%]	Zählrate [s^{-1}]	Herkunft/ Bemerkung
^{9}Be	0,0058	6809,6	3492	4,16	1,88	prompt
^{9}Be	0,00285	3367,4	4265	12,26	2,29	prompt
^{9}Be	0,00208	853,6	3456	16,40	1,86	prompt
^{9}Be	0,00191	2590,0	3244	13,72	1,74	prompt
^{9}Be	0,00098	3443,4	1669	14,53	0,90	prompt
^{1}H	0,3326	2223,2	145348	2,14	78,14	prompt
^{12}C	0,00261	4945,3	89005	1,13	47,85	prompt
^{12}C	0,00122	3683,9	47452	2,08	25,51	prompt
^{16}N	0,0274	6128,6	2109	6,31	1,13	verzögert ^{16}O(n,p)^{16}N

Die in Tab. 9.6 aufgeführten Zählraten der prompten Gamma-Quanten von Wasserstoff, Kohlenstoff und Stickstoff resultieren aus der Aktivierung der Bestrahlungskammer und erlauben die Verifikation der Standardbestrahlungs- und Messparameter. Im Vergleich zu der Aufnahme der Gamma-Signatur von z. B. Aluminium oder Kupfer wurde bei der Messung der Berylliumprobe eine um ca. 13 % höhere Zählrate von den Prompt-Gamma-Quanten von Wasserstoff registriert. Die Erhöhung der Zählrate resultiert aus dem geringen Absorptionsquerschnitt für thermische Neutronen von Beryllium in Kombination mit dem hohen Streuquerschnitt für thermische Neutronen von 7,63 b. Der gleiche Effekt wurde beim Zirkonium festgestellt und erläutert.

9.2.2 Arsen

Arsen ist ein chemotoxisches Element. Arsen(III)-oxid, Arsen(V)-oxid, Arsensäure und Arsenwasserstoff sind gemäß VwVwS in die Wassergefährdungsklasse 3 als stark wassergefährdender Stoffe eingestuft /2-19/. Die Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwerte von elementarem Arsen sowie von Arsen(III)-oxid und Arsen(V)-oxid betragen im Endlagerungsverfahren Konrad 1 % der Bruttoabfallgebindemasse /2-4/. Die Toxizität von Arsen ist abhängig von der Art der vorliegenden Verbindung. Metallisches Arsen und sulfidische Verbindungen sind nahezu ungiftig, im Gegensatz sind andere Verbindungen, wie z. B. Arsenverbindungen mit dreiwertigem Arsen, stark giftig. Die Leitsubstanz zur Detektion einer möglichen wassergefährdenden Verbindung ist stets das Halbmetall Arsen. Anorganische Arsenverbindungen kommen natürlicherweise in kleinen Mengen vor und können über die Nahrung, das Wasser und die Luft aufgenommen werden. Zu einer Arsenaufnahme kann es auch über Hautkontakt mit arsenhaltigem Boden oder Wasser kommen. Arsen ist in Pflanzenschutzmitteln seit 1976 in Deutschland verboten /9-1/. Gewöhnlich sind die Konzentrationen in der Nahrung gering, doch Fische und Meerestiere können größere Mengen enthalten, da diese Tiere Arsen aus dem Wasser aufnehmen und ggf. akkumulieren. Hierbei handelt es sich um die weniger gefährliche, organische Form des Arsens. In größeren Mengen besteht jedoch auch bei diesen Arsenverbindungen bei einer Inkorporation eine Vergiftungsgefahr /9-1/.

Zur Aufnahme der charakteristischen Gamma-Signatur des Elements Arsen wurde eine Arsenoxidprobe (As_2O_3) mit einer Masse von 1000 g in die MEDINA-Bestrahlungskammer gestellt und ein Spektrum gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen (siehe Abb. 9.5). Der Schwerpunkt der Arsenprobe befand sich auf der Höhe des Detektors und war 25 cm von der Detektorfrontfläche entfernt. Das Gamma-Spektrum wurde mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet. Die registrierten prompten Gamma-Quanten von Arsen, induziert durch eine Neutronen-Aktivierung, sind mit den entsprechenden Nettopeakflächen und Zählraten in Tab. 9.7 aufgeführt.



Abb. 9.5: *Arsenoxidprobe mit einer Nettomasse von 1000 g innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer zur Aufnahme der charakteristischen Gamma-Signatur.*

Arsen hat mit ^{75}As nur ein stabiles Isotop. Der Wirkungsquerschnitt von Arsen für die Absorption thermischer Neutronen beträgt 4,153 b ± 0,08 b und das Resonanzintegral 63,74 b ± 4 b. Durch eine Neutronen-Aktivierung entsteht ^{76}As, welches mit einer Halbwertszeit von 1,0778 Tagen unter der Emission von Beta-Strahlung mit einer maximalen Energie von 2692 keV und zahlreichen Gamma-Quanten zerfällt. Die beim Zerfall emittierten Gamma-Quanten mit der höchsten Intensität haben eine Energie von 559,1 keV und 657,0 keV. Der partielle Wirkungsquerschnitt dieser Gamma-Quanten ist für eine Nachweisführung mit MEDINA zu gering.

Tab. 9.7: *Prompte Gamma-Quanten einer Arsenoxidprobe (1000 g As_2O_3) induziert durch die Aktivierung mit thermischen und epithermischen Neutronen. Das Spektrum wurde gemäß Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen.*

Isotop	$\sigma(E_\gamma)$ [barn]	γ-Energie [keV]	Netto-Peakfläche	Fehler [%]	Zählrate [s^{-1}]	Herkunft/ Bemerkung
^{75}As	0,56 + 0,16	6810,9 + 6808,8	1213	11,4	0,65	prompt
^{75}As	0,181	235,8	11472	13,7	6,17	prompt
^{75}As	0,151	5533,9	1138	15,7	0,61	prompt
^{75}As	0,104	7020,1	1117	9,7	0,60	prompt
^{75}As	0,100	426,6	4987	15,5	2,68	prompt
^{1}H	0,3326	2223,2	130030	3,1	69,91	prompt
^{10}B	716	477,6	111642	11,1	60,02	^{10}B(n,α)^{7}Li Interf. zu ^{75}As
^{12}C	0,00261	4945,3	91673	1,5	49,29	prompt
^{12}C	0,00122	3683,9	49048	2,2	26,37	prompt
^{16}N	0,0274	6128,6	1894	8,4	1,02	verzögert ^{16}O(n,p)^{16}N

Innerhalb von MEDINA lässt sich ^{75}As anhand der durch thermische und epithermische Neutronen induzierten prompten Gamma-Quanten mit einer Energie von 235,8 keV, 426,6 keV und 7020,1 keV nachweisen. Hierbei wurden Zählraten von 6,17 s^{-1}, 2,68 s^{-1}und 0,6 s^{-1} bestimmt. Besonders der Photopeak im Spektrum bei einer Energie von 7020,1 keV ist für eine interferenzfreie Analyse vorteilhaft. Zusätzlich werden die hochenergetischen Gamma-Quanten bei 7020,1 keV durch Selbstabsorption, abschirmende Strukturen oder Matrixeffekte wenig abgeschwächt.

Ebenfalls sind die von Arsen gemessenen prompten Gamma-Quanten mit einer Energie von 6808,8 keV und 6810,9 keV für einen Nachweis geeignet. Hierbei ist zu beachten, dass diese Gamma-Quanten nicht aufgelöst werden können. Bei hohen Zählraten können zusätzlich unechte Koinzidenzen aus den Gamma-Quanten vom ^{75}As mit einer Energie von 6294,3 keV und einem 511 keV Photon in diesem Peak nachgewiesen werden.

Die in Tab. 9.7 aufgeführten Zählraten der prompten Gamma-Quanten von Wasserstoff, Kohlenstoff und Stickstoff resultieren aus der Aktivierung der Bestrahlungskammer und verifizieren die Standardbestrahlungs- und Messparameter. Es sind keine signifikanten Abweichungen zur Messung der Gamma-Signatur von Aluminium, Kupfer oder Tantal erkennbar.

9.2.3 Selen

Selen ist ein essentielles Spurenelement, d. h. es ist lebensnotwendig für den menschlichen Organismus und muss daher in geringen Mengen mit der täglichen Nahrung aufgenommen werden. Ab einer Einnahme von 450 µg pro Tag kann es jedoch zu Selenvergiftung kommen. Eine akute Vergiftung kann sich auf das zentrale Nervensystem auswirken. Die Giftigkeit beruht auf dem Austausch von Selenatomen gegen Schwefelatome in Aminosäuren. Die einmalige Dosis von 5 mg Selen führt zu einer Vergiftung, täglich eingenommen kann diese Dosis tödlich sein /9-1/. Aus diesem Grund sind Selendioxid und Selensäure

gemäß VwVwS in die Wassergefährdungsklasse 2 als wassergefährdender Stoffe und Selenwasserstoff in die Wassergefährdungsklasse 3 als stark wassergefährdender Stoffe eingestuft /2-19/.

Der Beschreibungsschwellenwert von elementarem Selen beträgt im Endlagerungsverfahren Konrad 1 % der Bruttoabfallgebindemasse. Der Deklarationsschwellenwert beträgt 5 %. Beide Schwellenwerte betragen bei Selendioxid 1 % /2-4/.

Zur Aufnahme der charakteristischen Gamma-Signatur des Elements Selen wurde eine Selendioxidprobe (SeO_2) mit einer Masse von 1000 g in die MEDINA-Bestrahlungskammer gestellt und ein Spektrum gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen (siehe Abb. 9.6). Der Schwerpunkt der Selenprobe befand sich auf der Höhe des Detektors und war 25 cm von der Detektorfrontfläche entfernt. Das Gamma-Spektrum wurde mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet.

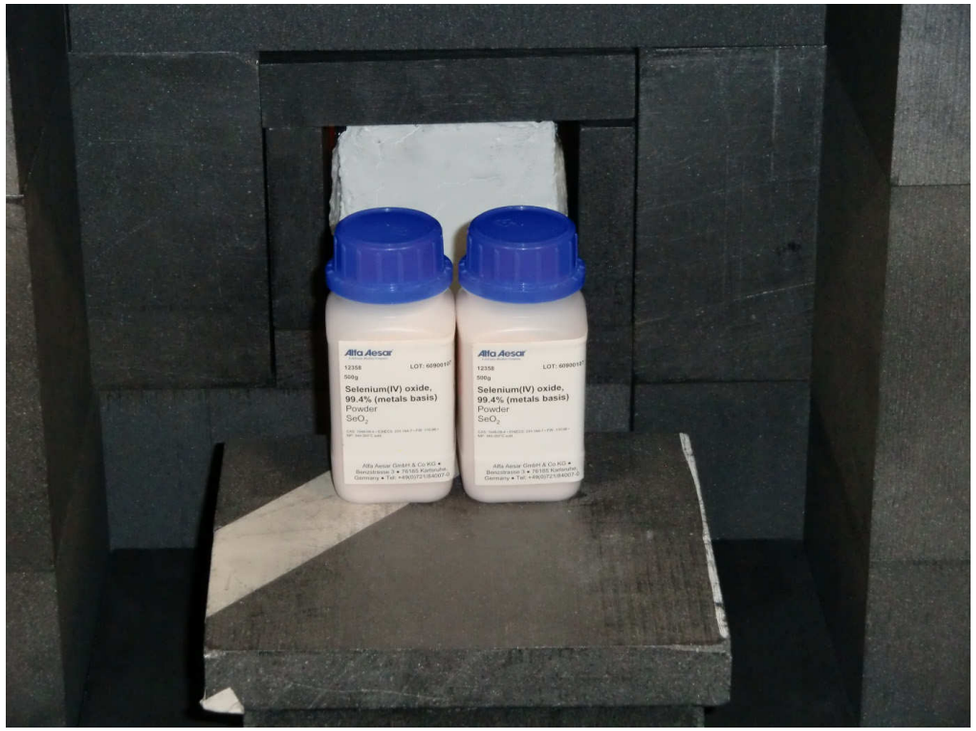


Abb. 9.6: *Selendioxidproben mit einer Gesamtmasse von 1000 g innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer zur Aufnahme der charakteristischen Gamma-Signatur.*

Selen besteht aus den stabilen Isotopen ^{74}Se, ^{76}Se, ^{77}Se, ^{78}Se, ^{80}Se und ^{82}Se. Die Isotopenhäufigkeiten und isotopenspezifische Nukleardaten von Selen sind in Tab. 9.8 aufgeführt.

Tab. 9.8: *Kernphysikalische Daten für eine Neutronen-Aktivierungs-Analyse von Selen (Daten: INDC(NDS)-440).*

Isotop	Isotopen-häufigkeit [%]	σ_{th} [barn]	Resonanz-integral σ_{epi} [barn]	Aktivierungs-produkt	Halbwertszeit Aktivierungsprodukt
Se	nat.	11,7 ± 0,2	13 ± 2	^{73,75,77,78,81,83}Se	
^{74}Se	0,889	51,8 ± 1,2	560 ± 50	^{75}Se	119,779 d
^{76}Se	9,366	85 ± 7	40 ± 4	^{77}Se	stabil
^{77}Se	7,535	42 ± 4	30 ± 3	^{77m}Se, ^{78}Se	17,36 s, stabil
^{78}Se	23,772	0,38 ± 0,02	4 ± 0,6	^{79}Se	$3{,}27 \cdot 10^{5}$ y
^{80}Se	49,607	0,61 ± 0,05	1,6 ± 0,2	^{81m}Se, ^{81}Se	57,28 m, 18,45 m
^{82}Se	8,731	0,043 ± 0,003	30 ± 4	^{83m}Se,^{83}Se	70,1 s, $1{,}08 \cdot 10^{20}$ y

Die registrierten prompten Gamma-Quanten von Selen induziert durch eine Neutronen-Aktivierung sind mit den entsprechenden Nettopeakflächen und Zählraten in Tab. 9.9 aufgeführt.

Tab. 9.9: *Prompte Gamma-Quanten einer Selendioxidprobe (1000 g SeO_2) induziert durch die Aktivierung mit thermischen und epithermischen Neutronen. Das Spektrum wurde gemäß Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen.*

Isotop	$\sigma(E_\gamma)$ [barn]	γ-Energie [keV]	Netto-Peakfläche [#]	Fehler [%]	Zählrate [s^{-1}]	Herkunft/ Bemerkung
^{76}Se	2,14	613,7	83557	4,62	44,92	prompt
	2,06	239,0	107226	6,34	57,65	prompt
	0,273 + 1,26	518,2 + 520,6	65985	4,01	35,48	Nicht auflösbar
	0,855	161,9	52348	7,94	28,14	verzögert
	0,623	6600,7	5198	5,33	2,79	prompt
	0,538	249,7	27873	9,14	14,99	prompt
	0,443	694,9	15518	6,20	8,34	prompt
	0,337	297,2	14819	12,59	7,97	prompt
	0,319	439,5	12123	15,15	6,52	prompt
	0,317	1308,1	10944	6,02	5,88	prompt
	0,301	5600,9	8787	5,01	4,72	prompt
	0,289	6006,9	2454	11,52	1,32	prompt
	0,280	286,6	13252	11,15	7,12	prompt
	0,262	885,8	16042	6,60	8,62	prompt
	0,243	578,9	6648	14,79	3,57	prompt
	0,240	1296,9	7895	6,98	4,24	prompt
	0,233	200,5	38497	12,70	20,70	prompt
	0,220	9883,4	690	8,21	0,37	prompt
	0,119	1995,9	3732	13,07	2,01	prompt
	0,117	1005,2	5110	16,1	2,75	prompt
	0,115	1411,6	4779	13,00	2,57	prompt
^{1}H	0,3326	2223,2	135054	2,36	72,61	prompt
^{12}C	0,00261	4945,3	82743	1,64	44,49	prompt
^{12}C	0,00122	3683,9	45940	1,82	24,70	prompt
^{16}N	0,0274	6128,6	1844	9,69	0,99	verzögert ^{16}O(n,p)^{16}N

Durch eine Neutronen-Aktivierung von Selen können die Radionuklide ^{75}Se, ^{77m}Se, ^{79}Se, ^{81m}Se ^{81}Se, ^{83m}Se und ^{83}Se entstehen, welche mit den in der Tab. 9.8 aufgeführten Halbwertszeiten zerfallen. Eine Neutronenbestrahlung im Zeitbereich von mehreren Stunden führt zu einer nennenswerten Bildung der Aktivierungsprodukte ^{77m}Se, ^{81m}Se und ^{81}Se. Die Aktivität von ^{77m}Se würde bei einer Neutronenbestrahlung sogar bereits nach ca. drei Minuten in der Sättigung vorliegen. Aufgrund der beim Zerfall des ^{77m}Se emittierten niederenergetischen Gamma-Quanten mit einer Energie von 161,9 keV ist dieses Aktvierungsprodukt für einen Selen-Nachweis nur geeignet, wenn es sich um Proben mit geringer Selbstabsorption handelt. Bei der verwendeten Selendioxidprobe könnten die Gamma-Quanten mit einer Energie von 161,9 keV für eine Quantifizierung jedoch gut verwendet werden, wenn man die Gamma-Selbstabschirmung der Probe mit berücksichtigt. Im MEDINA-Messverfahren lässt sich Selen anhand der durch thermische und epithermische Neutronen induzierten prompten Gamma-Quanten mit einer Energie zwischen 200 keV und 10 MeV nachweisen. Besonders hohe Zählraten von 57,65 s^{-1} und 44,92 s^{-1} wurden bei den prompten Gamma-Quanten mit einer Energie von 239,0 keV und 613,7 keV bestimmt. Der Nachweis und die Quantifizierung von Selen können mit guter Eignung durch die hochenergetischen prompten Gamma-Quanten mit einer Energie von 5600,9 keV und 6600,7 keV erfolgen. Für diese Gamma-Quanten wurden Zählraten von 4,72 s^{-1} und 2,79 s^{-1} bestimmt. Die hochenergetischen Gamma-Quanten werden durch Selbstabsorption, abschirmende Strukturen oder Matrixeffekte weniger abgeschwächt.

Die in Tab. 9.9 aufgeführten Zählraten der prompten Gamma-Quanten von Wasserstoff, Kohlenstoff und Stickstoff resultieren aus der Aktivierung der Bestrahlungskammer und verifizieren die Standardbestrahlungs- und Messparameter. Es sind keine signifikanten Abweichungen zur Messung der Gamma-Signatur von Aluminium, Kupfer oder Tantal erkennbar.

9.2.4 Quecksilber

Quecksilber sowie Quecksilberverbindungen sind stark wassergefährdend (WGK 3) /2-19/. Aufgrund des bei Raumtemperatur sehr geringen Dampfdrucks von Quecksilber geht es bei einer Freisetzung schnell in die Gasphase über. Die Inhalation von Quecksilberdämpfen ist toxischer als die Ingestion der flüssigen Form. Der Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwert von elementarem Quecksilber beträgt im Endlagerungsverfahren Konrad 1 % der Bruttoabfallgebindemasse. Die Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwerte von zahlreichen Quecksilberverbindungen wie Quecksilber(II)-chlorid, Quecksilber(I)-nitrat-Hydrat oder Dimethyl-quecksilber sind mit 0,07 %, 0,07 % und 0,05 % noch geringer /2-4/.

Zur Aufnahme der charakteristischen Gamma-Signatur des Elements Quecksilber wurde eine metallische Quecksilberprobe mit einer Masse von 1660 g in die Bestrahlungskammer gestellt und ein Spektrum gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen (siehe Abb. 9.7). Der Schwerpunkt der Quecksilberprobe befand sich auf der Höhe des Detektors und war 25 cm von der Detektorfrontfläche entfernt. Das Gamma-Spektrum wurde mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet.

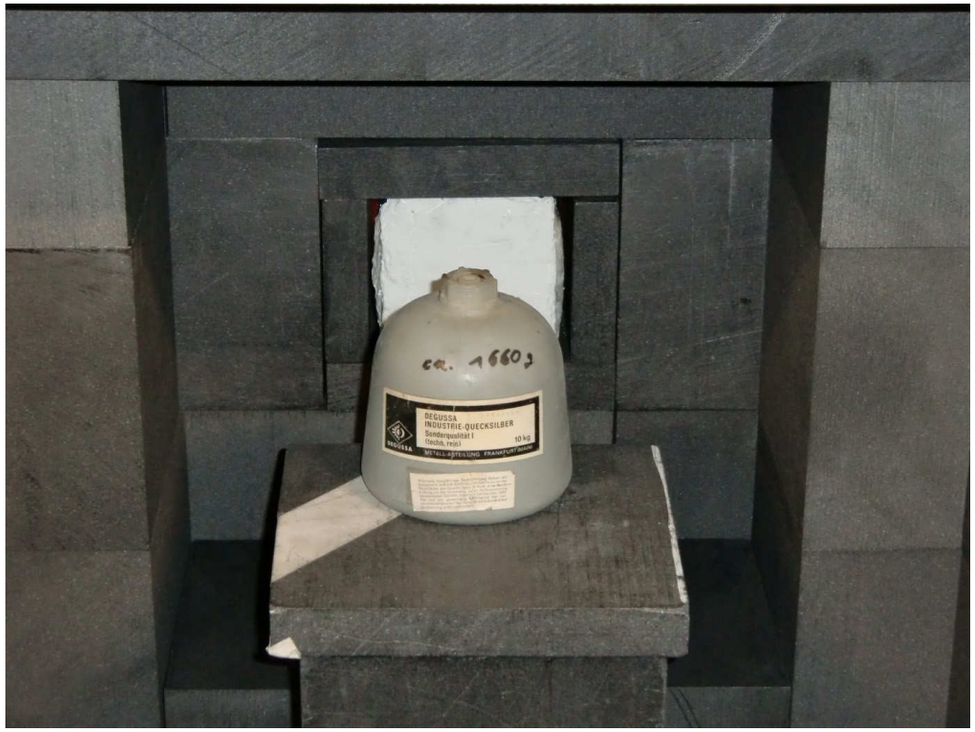


Abb. 9.7: *Quecksilberprobe mit einer Nettomasse von 1660 g innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer zur Aufnahme der charakteristischen Gamma-Signatur.*

Quecksilber besteht aus den stabilen Isotopen ^{196}Hg, ^{198}Hg, ^{199}Hg, ^{200}Hg, ^{201}Hg, ^{202}Hg und ^{204}Hg. Die Isotopenhäufigkeiten und isotopenspezifische Nukleardaten von Quecksilber sind in Tab. 9.10 aufgeführt. Durch eine Neutronen-Aktivierung können die Radionuklide ^{197}Hg, ^{203}Hg und ^{205}Hg entstehen, welche mit den Halbwertszeiten von 64,14 Stunden, 46,612 Tagen und 5,2 Minuten zerfallen. Eine Neutronenbestrahlung im Zeitbereich von mehreren Stunden impliziert die Sättigungsaktivität des Aktivierungsproduktes ^{205}Hg.

Tab. 9.10: *Kernphysikalische Daten von Quecksilber (Daten: JENDL-4.0).*

Isotop	Isotopen-häufigkeit [%]	σ_{th} [barn]	Resonanz-integral σ_{epi} [barn]	Aktivierungs-produkt	Halbwertszeit Aktivierungsprodukt
Hg	nat.	370,4 ± 4,0	88,35 ± 5	diverse	siehe unten
^{196}Hg	0,153	3079 ± 180	420,2 ± 16	^{197}Hg	64,14 h
^{198}Hg	9,968	1,986 ± 0,3	74,47 ± 2	^{199}Hg	stabil
^{199}Hg	16,873	2150 ± 48	438 ± 20	^{200}Hg	stabil
^{200}Hg	23,096	1,44	2,58	^{201}Hg	stabil
^{201}Hg	13,181	7,79	34,47	^{202}Hg	stabil
^{202}Hg	29,86	4,95	3,210	^{203}Hg	46,612 d
^{204}Hg	6,865	0,4316	2,725	^{205}Hg	5,2 m

Die registrierten prompten Gamma-Quanten von Quecksilber induziert durch eine Neutronen-Aktivierung sind mit den entsprechenden Nettopeakflächen und Zählraten in Tab. 9.11 aufgeführt.

Tab. 9.11: *Prompte Gamma-Quanten einer Quecksilberprobe (1660 g) induziert durch die Aktvierung mit thermischen und epithermischen Neutronen. Das Spektrum wurde gemäß Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen.*

Isotop	$\sigma(E_\gamma)$ [barn]	γ-Energie [keV]	Netto-peakfläche	Fehler [%]	Zählrate [s^{-1}]	Herkunft/ Bemerkung
^{199}Hg	251	367,9	115970	5,7	62,35	Interf. zu ^{56}Fe 366,7 keV
^{199}Hg	62,5	5967,0	6666	3,4	3,58	prompt
^{199}Hg	56,2	1693,3	21804	5,7	11,72	prompt
^{199}Hg	30,1	4739,4	5124	7,9	2,75	prompt
^{199}Hg	29,6	1570,3	9841	10,1	5,29	prompt
^{199}Hg	24,3	2002,1	5112	7,9	2,75	Interf. zu ^{40}Ca 2001,3 keV
^{199}Hg	23,1	6458,0	2476	8,5	1,33	prompt
^{199}Hg	22,3	661,4	11858	8,6	6,38	Interf. zu ^{137}Cs 661,6 keV
^{199}Hg	21,5	1262,9	8341	7,1	4,48	Interf. zu ^{12}C 1261,8 keV
^{199}Hg	13,5	886,2	6555	13,0	3,52	prompt
^{199}Hg	12,3	1225,5	4647	10,2	2,50	prompt
^{199}Hg	10,6	1273,5	3364	13,5	1,80	Interf. zu ^{28}Si 1273,4 keV
^{1}H	0,3326	2223,2	146130	3,3	78,56	prompt
^{12}C	0,00261	4945,3	88457	1,2	47,56	prompt
^{12}C	0,00122	3683,9	41826	2,3	22,49	prompt
^{16}N	0,0274	6128,6	2264	6,5	1,22	verzögert ^{16}O(n,p)^{16}N

Im MEDINA-Messverfahren lässt sich Quecksilber anhand der durch thermische und epithermische Neutronen induzierten prompten Gamma-Quanten mit einer Energie von 367,9 keV und 1693,3 keV nachweisen. Für diese Gamma-Quanten wurden Zählraten von 62,89 s^{-1} und 11,72 s^{-1} bestimmt. Bei gleichzeitiger Aktivierung von Eisen und Quecksilber muss bei der Auswertung der 367,9 keV Linie des Quecksilbers eine Interferenz mit der Gamma-Linie von Eisen mit einer Energie von 366,7 keV berücksichtig werden.

Der Nachweis und die Quantifizierung von Quecksilber können mit guter Eignung ebenfalls durch die hochenergetischen prompten Gamma-Quanten mit einer Energie von 5967,0 keV und 6458,0 keV erfolgen. Die hochenergetischen Gamma-Quanten werden durch Selbstabsorption, abschirmende Strukturen oder Matrixeffekte weniger abgeschwächt.

Die in Tab. 9.11 aufgeführten Zählraten der prompten Gamma-Quanten von Wasserstoff, Kohlenstoff und Stickstoff resultieren aus der Aktivierung der Bestrahlungskammer. Die Erhöhung der gemessenen Prompt-Gamma-Quanten vom Wasserstoff resultiert aus dem hohen Streuquerschnitt für thermische Neutronen von 24,36 b. Der gleiche Effekt wurde beim Zirkonium und Beryllium festgestellt.

Kapitel 10

Studie über räumlich konzentrierte Elemente in 200-l-Fässern

Formel-Kapitel (nächstes) Abschnitt 10

Zusammenfassung

Das MEDINA-Messverfahren basiert auf der Analyse winkelabhängiger Gamma-Spektren, induziert durch die Neutronen-Aktivierung eines 200-l-Fasses. Anhand der charakteristischen Gamma-Signatur eines Elements werden die für eine Analyse geeigneten prompten oder verzögerten Gamma-Quanten selektiert. Nachfolgend geschieht mittels der Spektrenauswertung die Bestimmung der Netto-Photopeakflächen und der Netto-Zählraten bei den jeweiligen Winkelstellungen des Fasses. Bei einer rotationsabhängigen Neutronen-Aktivierungs-Analyse von einem Fass mit einer homogenen Elementverteilung in der Abfallmatrix sind die gemessenen Zählraten vom Rotationswinkel des Fasses unabhängig. Eine inhomogene Elementverteilung verursacht bei der rotationsabhängigen Neutronen-Aktivierungs-Analyse eine winkelabhängige Zählratenverteilung.

In diesem Kapitel wird die Zählratenverteilung einer räumlich konzentrierten Cadmiumprobe in einer Betonmatrix in Abhängigkeit des Rotationswinkels ausgewertet. Hierzu wird die Cadmiumprobe an neun unterschiedliche Höhen- und Radialpositionen verbracht. Für jede Positionierung erfolgen acht rotationsabhängige Messungen. Insgesamt werden somit an 72 Positionen mit der Cadmiumprobe Neutronen-Aktivierungs-Analysen durchgeführt. Die in Abhängigkeit einer jeweiligen Position bestimmte winkelabhängige Zählratenverteilung wird durch eine Ausgleichsfunktion beschrieben. Anhand der Streuung dieser Approximationsfunktion kann der Radialabstand der Probe bestimmt werden. Die positionsabhängigen Aktivierungsanalysen wurden ebenfalls verwendet, um den lokalen Neutronenfluss im Fass abzubilden.

10.1 Korrelationsstudie über die Aktivierung eines Cadmiumblechs in einem 200-l-Fass mit einer Betonmatrix

Radioaktive Abfälle werden aufgrund der kontaminationsbindenden, abschirmenden und radionuklidrückhaltenden Wirkung oft mit Beton um- bzw. übergossen und sind somit im Abfallbehälter formstabil fixiert. Bei so verarbeiteten Abfällen sind die Radionuklide und die inaktiven Komponenten in der Betonmatrix inhomogen verteilt. Eine durch ein Messverfahren festgestellte inhomogene Verteilung der Radioaktivität geht mutmaßlich mit einer inhomogenen Verteilung wassergefährdender Stoffe einher. Besonders Altabfälle wurden in der Vergangenheit oft betoniert und sind bezüglich der heutigen Anforderungen einer stofflichen Deklaration meist mangelhaft dokumentiert. Die Untersuchung des MEDINA-Messverfahrens wurde aus diesem Grund für eine Betonmatrix prioritär durchgeführt. Das Messverfahren soll ein wirksames Werkzeug sein, um ohne Öffnen von Abfallfässern zerstörungsfrei einen Informationsgewinn bzgl. der stofflichen Zusammensetzung der Abfälle zu erzielen. Die Problematik einer Umdeklaration der Abfälle von Altabfällen zu Neuabfällen besteht bei MEDINA ebenso nicht, wie die Fragestellung einer charakteristischen oder nicht repräsentativen Probeentnahme. Es ist jedoch erforderlich, dass mit dem Messverfahren wassergefährdende Elemente im gesamten 200-l-Fass mit einer vertretbaren Fehlerspanne detektiert und quantifiziert werden können. Die mit dem Messverfahren realisierbaren Nachweisgrenzen für wassergefährdende Elemente sollten unter Berücksichtigung von systematischen und statistischen Fehlern geringer als die Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwerte des BfS sein /2-4/.

In diesem Kapitel wird durch eine Studie über ein räumlich konzentriertes Element in einer Betonmatrix dargelegt, inwiefern das Messverfahren repräsentativ für das gesamte 200-l-Fass ist. Hierzu wird der Kausalzusammenhang zwischen einem im Fass befindlichen wassergefährdenden Stoff und dem rotationsabhängigen Messsignal untersucht.

Eine beim MEDINA-Messverfahren aufgenommene winkelunabhängige Zählratenverteilung von detektierten prompten Gamma-Quanten resultiert aus der Neutronen-Aktivierung von:

- der Bestrahlungskammer (identifizierbar durch Untergrundspektrum),
- homogen in der Abfallmatrix verteilten Elementen,
- räumlich ausgedehnten Elementkonzentrationen deren Schwerpunkt sich auf der Symmetrieachse des Fasses befindet, oder
- dem Fasskörper.

Eine winkelabhängige Zählratenverteilung von detektierten Prompt-Gamma-Quanten ist gegeben, wenn ein Element inhomogen im 200-l-Fass verteilt ist. Als räumlich konzentrierter Stoff wurde für die Studie Cadmium ausgewählt. Das mit einer natürlichen Isotopenhäufigkeit von 12 % vorhandene ^{113}Cd emittiert bei einer Neutronen-Aktivierung Prompt-Gamma-Quanten mit einer Energie von 558,32(3) keV und 651,19(3) keV. Die partiellen Wirkungsquerschnitte für diese Photonenproduktion, induziert durch thermische Neutronen, sind besonders hoch und betragen 1860(30) b und 358(5) b. Im Vergleich zu

anderen, durch eine Neutronen-Aktivierung induzierten Gamma-Quanten, sind die Prompt-Gamma-Quanten des Cadmiums verhältnismäßig niederenergetisch. Sie unterliegen somit ausgeprägter einer Abschwächung durch die Betonmatrix und die Stahlhülle des Fasses. Die Verwendung von Cadmium zum Eignungsnachweis des Messverfahrens für das gesamte 200-l-Fass ist vor diesem Hintergrund konservativ.

Der elementare Einfangquerschnitt des Cadmiums ist für thermische Neutronen mit 2522(50) b besonders hoch. Aufgrund dieses hohen Wirkungsquerschnitts und der hieraus resultierenden geringen Eindringtiefe von thermischen Neutronen muss bei Cadmium zwangsläufig die Aktivierung durch epithermische Neutronen mit berücksichtigt werden (siehe Kapitel 8.2). Inwieweit ein Element durch thermische und epithermische Neutronen aktiviert wird, ist vom Einfangquerschnitt für thermische Neutronen bzw. dem Resonanzintegral und dem thermischen sowie epithermischen Neutronenfluss abhängig. Bei Elementen mit hohen Einfangquerschnitten für thermische Neutronen wird durch thermische Neutronen nur die Oberfläche aktiviert, weswegen die Aktivierung durch epithermische Neutronen mit einer größeren Eindringtiefe bereits repräsentativer für eine Probemasse ist. Bei dem Quantifizierungsmodell einer homogenen sowie inhomogenen Elementverteilung, aufgeführt in Kapitel 11, wird aus diesem Grund immer die Aktivierung durch thermische und epithermische Neutronen berücksichtigt.

Als Cadmiumprobe dient ein 134,4 g schweres Cadmiumblech mit einer Stärke von 1 mm und einer Kantenlänge von 124,6 mm. Die Masse des 200-l-RRW-Stahlfasses beträgt 52,32 kg und die innerhalb des Fasses durch 76 Betonformkörper modellierte Betonmatrix weist eine Masse von 199,5 kg auf. Das Cadmiumblech wurde, wie in Abb. 10.1 gezeigt, an einen Betonformkörper fixiert und nachfolgend an insgesamt 9 verschiedenen radialen (R = 6 cm, 7 cm und 28 cm) und axialen (H = 9 cm, 46 cm und 73 cm) Positionen in der Betonmatrix verbracht. Durch diese Verteilung kann in der Studie nahezu das komplette Fassvolumen untersucht werden. Der Radialabstand R wird ausgehend von der Symmetriesachse des Fasses und die Höhe H ausgehend vom Fassboden angegeben. Bei der untersten Positionierung H = 9 cm berührt das Cadmiumblech den Fassboden. Bei einer Höhe H = 46 cm befindet sich das Cadmiumblech mit seinem Schwerpunkt auf halber Fasshöhe und bei der obersten Positionierung H = 73 cm schließt das Cadmiumblech nach oben mit der Betonmatrix ab. Bei dem Radialabstand von 28 cm befindet sich das Cadmiumblech an der inneren Fasswandung. Bei dem Radialabstand von 6 cm befindet sich das Cadmiumblech nahe zur Symmetrieachse des Fasses.

Für jede Positionierung des Cadmiumblechs in der Betonmatrix wurde eine rotationsabhängige Messprozedur durchgeführt. Diese bestand aus acht diskreten Messungen in 45°-Schritten. Die Messzeit pro Rotationsschritt betrug 2000 s. Die komplette Messzeit für ein Fass dauert demnach für jede Cadmiumposition ca. 4,5 Stunden. Die Rotation in 45°-Schritten ist rechtsherum positiv. Die Spektren wurden gemäß den Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen (siehe Tab. 5.7). Die Gamma-Spektren wurden mit der Spektroskopie-Software GAMMA-W ausgewertet.



Abb. 10.1: *Für die Inhomogenitätsstudie verwendete Cadmiumprobe. Das Cadmiumblech mit einer Masse von 134,4 g ist an einen Betonformkörper fixiert.*

In der Inhomogenitätsstudie werden zunächst die winkelunabhängigen Netto-Zählratenverteilungen ausgewertet. Sie resultieren aus der Aktivierung der Elemente Wasserstoff, Silizium, Kalzium und Eisen. Die nachgewiesenen Prompt-Gamma-Quanten von Wasserstoff (^{1}H), Silizium (^{28}Si) und Kalzium (^{40}Ca) entstehen durch die Aktivierung der Betonmatrix, in welcher diese Elemente, bezogen auf das Netto-Fassvolumen, homogen verteilt sind. Die nachgewiesenen Zählraten des Eisens resultieren aus der Aktivierung des Fasskörpers aus Stahl. Da die genannten Elemente bereits im aktiven Untergrundspektrum mit geringeren Zählraten nachgewiesen wurden, werden diese Anteile für eine winkelabhängige Netto-Zählratenverteilung der Betonmatrix und des Fasskörpers abgezogen. In Abb. 10.2 werden die Netto-Zählraten für die intensivsten Prompt-Gamma-Quanten, induziert durch die Aktivierung der Elemente Wasserstoff (^{1}H: 2223,2 keV), Silizium (^{28}Si: 3538,9 keV) Kalzium (^{40}Ca: 1942,6 keV) und Eisen (^{56}Fe: 352,3 keV), in Abhängigkeit des Rotationswinkels dargestellt. Wie zu erwarten, wird für keine der analysierten Gamma-Linien eine rotationsabhängige Zählratenverteilung beobachtet.

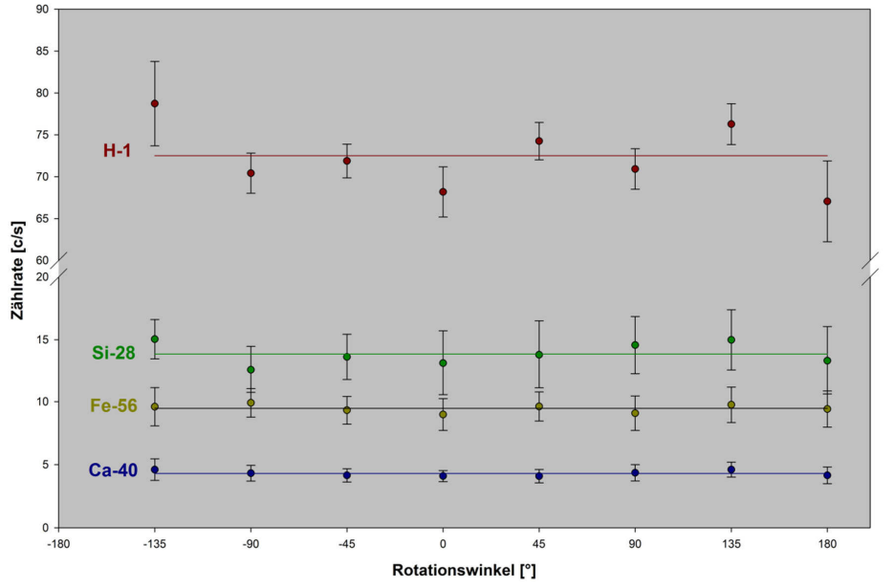


Abb. 10.2: *Prompt-Gamma-Zählraten (counts/second; c/s) von Wasserstoff (^{1}H: 2223,2 keV), Silizium (^{28}Si: 3538,9 keV), Kalzium (^{40}Ca: 1942,6 keV) und Eisen (^{56}Fe: 352,3 keV) bei der Messung eines 200-RRW-Fasses mit einer Cadmiumprobe in einer Betonmatrix. Die Messung erfolgte gemäß Standardbestrahlungs- und Messparametern.*

Die winkelabhängige Messung der vom Cadmium emittierten Gamma-Quanten ist in Abb. 10.3 dargestellt. Die Abbildung zeigt einen Auszug der acht rotationsabhängigen Gamma-Spektren bei der Analyse einer Cadmiumposition innerhalb der Betonmatrix des 200-l-Fasses. Die Anzahl der detektierten prompten Gamma-Quanten des Cadmiums bei den Energien 558,3 keV und 651,2 keV variiert zwischen den einzelnen Rotationsschritten. Ersichtlich ist dies durch die unterschiedlichen Photopeakflächen. Beginnend mit einem Winkel von 0° (Cd-Blech gegenüber Neutronengenerator) nimmt die Fläche der Photopeaks zunächst zu, erreicht bei 90° (Cd-Blech gegenüber Detektor) ein Maximum und nimmt mit weiterer Rotation wieder ab.

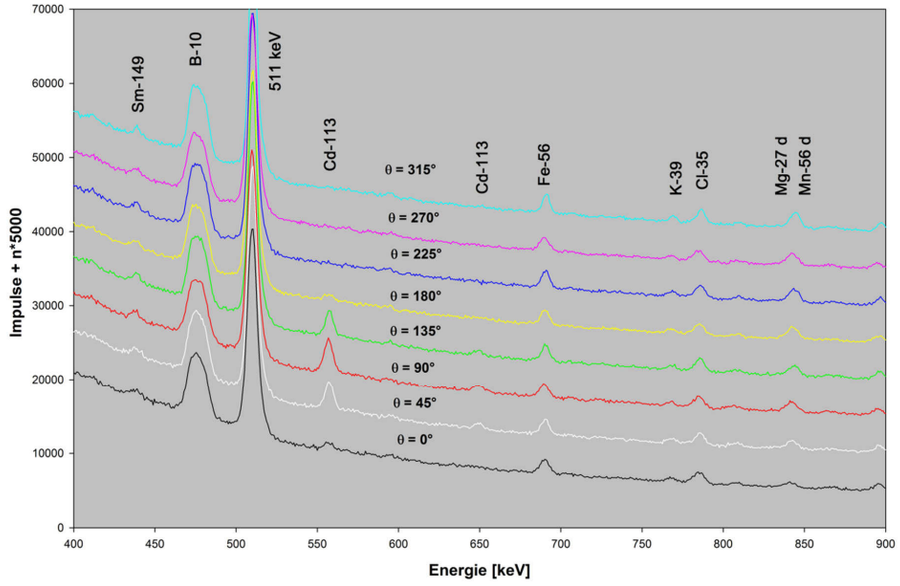


Abb. 10.3: *Darstellung von acht winkelabhängigen Gamma-Spektren im Energiebereich 400 keV bis 900 keV resultierend aus der Neutronen-Aktivierung einer 134,4 g schweren Cadmiumprobe (H = 46 cm, R = 28 cm) in einer Betonmatrix. Die Gamma-Spektren sind gemäß den MEDINA-Standardbestrahlungs- und Messparametern aufgenommen. Die Spektren sind zur Anschaulichkeit beginnend pro 45°-Schritt um jeweils 5000 Impulse nach oben verschoben.*

Die winkelabhängige Anzahl der gemessenen Gamma-Quanten ist abhängig von:

- der Position der Cadmiumprobe innerhalb des Effizienzfeldes des Detektors,
- den unterschiedlichen Weglängen der aus der Cadmiumprobe emittierten Photonen durch die Betonmatrix und die Stahlwandung des Fasses und
- der Inhomogenität im Neutronenfluss auf einer horizontalen Fassebene.

Die winkelabhängigen Photopeakflächen sind bei der Energie von 651,2 keV im Vergleich zu der Energie bei 558,3 keV niedriger. Ursache hierfür ist der geringere partielle Wirkungsquerschnitt für die Gamma-Emission des Cadmiums bei 651 keV und die Energieabhängigkeit der Photopeak-Effizienz des Spektrometers. Die höchste Photopeakfläche wird bei den rotationsabhängigen Messungen dann beobachtet, wenn sich das Cadmiumblech möglichst nah zu dem Detektor befindet. Anhand der bestimmten Netto-Photopeakflächen werden die gemessenen Netto-Zählraten bei den genannten Energien für die verschiedenen Cadmiumpositionen berechnet.

10.2 Auswertung der winkelabhängigen Zählratenverteilungen

Die bei den neun Positionen des Cadmiumblechs gemessenen winkelabhängigen Zählratenverteilungen der Gamma-Quanten bei 558,3 keV und 651,2 keV sind in Abb. 10.4 und Abb. 10.5 für die Positionierung des Cadmiumblechs in der unteren Fassebene (H = 9 cm), in Abb. 10.6 und Abb. 10.7 für die Positionierung des Cadmiumblechs in der mittleren Fassebene (H = 43 cm) und in Abb. 10.8 und Abb. 10.9 für die Positionierung des Cadmiumblechs in der oberen Fassebene (H = 73 cm) dargestellt. In den genannten Diagrammen werden die Zählratenverteilungen zur besseren Anschaulichkeit und Vergleichbarkeit so dargestellt, dass der Rotationsschritt mit der maximalen Zählrate bei 0° vorliegt und die anderen Zählraten beginnend von diesem Punkt in 45°-Schritten rechts und links davon entfernt vorliegen. Eine negative Winkelangabe des Rotationswinkels bedeutet dabei eine Rotation hin zu der Seite, auf der der Neutronengenerator platziert ist.

Bei Rotation des Cadmiumblechs in einer horizontalen Fassebene nehmen mit zunehmendem Radialabstand die maximal bei einem Rotationsschritt und die integral über alle Rotationsschritte gemessenen Zählraten zu. Begründet ist dies dadurch, dass die im Detektor nachgewiesenen Gamma-Quanten von Cadmium auf dem Weg zum Detektor mit steigendem Radialabstand geringere Absorptionsstrecken durch die Betonmatrix zurücklegen. Die Absorption durch die Betonmatrix ist so stark, dass bei einem Radialabstand von 6 cm und einer Positionierung in der oberen oder unteren Fassebene die emittierten Gamma-Quanten mit einer Energie von 651,2 keV komplett abgeschirmt werden. Nur bei einer Positionierung in der mittleren Fassebene kann bei einem Radialabstand von 6 cm bei der Gamma-Energie von 651,2 keV bei drei Winkelpositionen eine Zählrate gemessen werden. Bei der Gamma-Emission von Cadmium mit einer Energie von 558,3 keV wird bei einem Radialabstand von 6 cm eine stärkere Winkelabhängigkeit im Zählratensignal gemessen.

Es ist zu erkennen, dass diese geringen Radialabstände (< 6 cm) einen Grenzbereich darstellen. Bei kleinen Radialabständen ist zu erwarten, dass eine kaum feststellbare Winkelabhängigkeit, eine konstante Zählratenverteilung oder keine Zählrate gemessen wird. Eine winkelunabhängige Zählrate bedeutet eine maximale Streuung der Zählratenverteilung. Nimmt nun der Radialabstand bei der Positionierung des Cadmiumblechs zu, steigt ebenfalls die Winkelabhängigkeit des Zählratensignals und die Streuung der Zählratenverteilung nimmt ab. Dass mit zunehmendem Radialabstand die Streuung der winkelabhängigen Zählratenverteilung abnimmt, ist dadurch begründet, dass der Effekt der Abschirmung der aus dem Cadmiumblech emittierten Gamma-Quanten dominant ist im Vergleich zum Einfluss einer rotierenden Punktquelle im Effizienzfeld des Detektors.

Zählratenverteilungen für die Positionierung des Cadmiumblechs auf der unteren Ebene

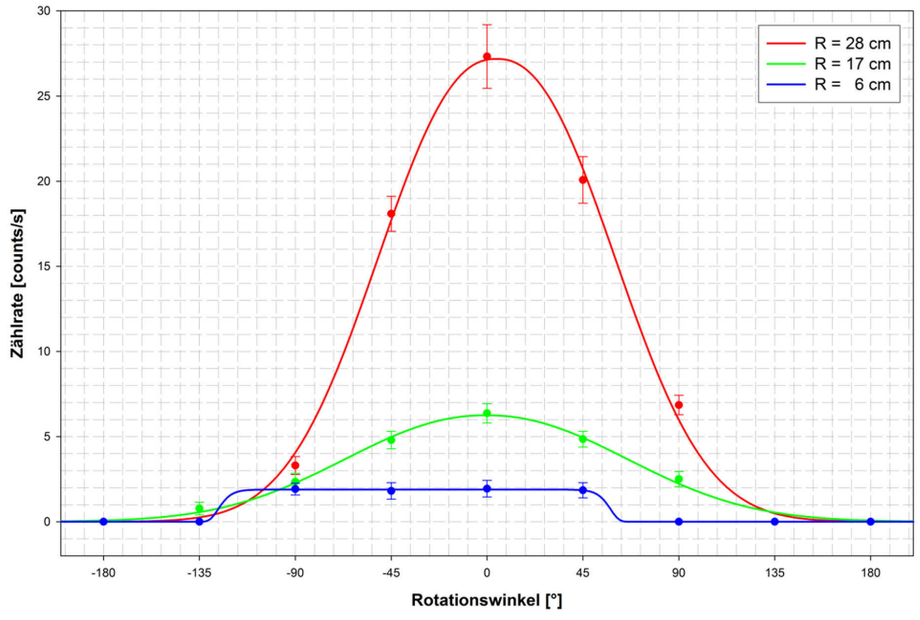


Abb. 10.4: *Winkelabhängige Zählratenverteilungen der gemessenen Prompt-Gamma-Quanten von ^{113}Cd bei 558,3 keV für verschiedenen Radialabstände R und bei der Höhe H = 6 cm.*

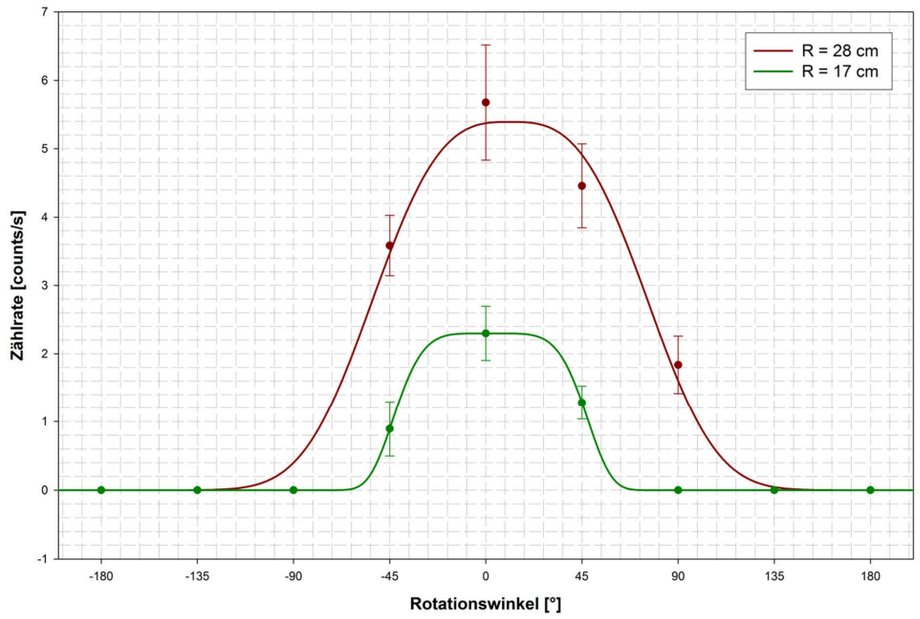


Abb. 10.5: *Winkelabhängige Zählratenverteilungen der gemessenen Prompt-Gamma-Quanten von ^{113}Cd bei 651,2, keV für verschiedene Radialabstände R und bei der Höhe H = 6 cm.*

Zählratenverteilung für die Positionierung des Cadmiumblechs auf der mittleren Ebene

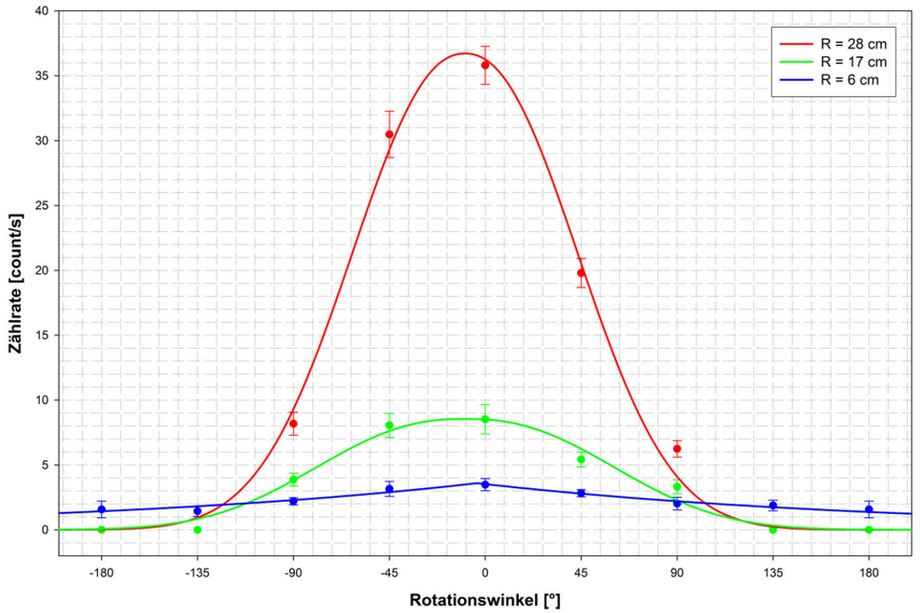


Abb. 10.6: *Winkelabhängige Zählratenverteilungen der gemessenen Prompt-Gamma-Quanten von ^{113}Cd bei 558,3 keV für verschiedene Radialabstände R und bei der Höhe H = 43 cm.*

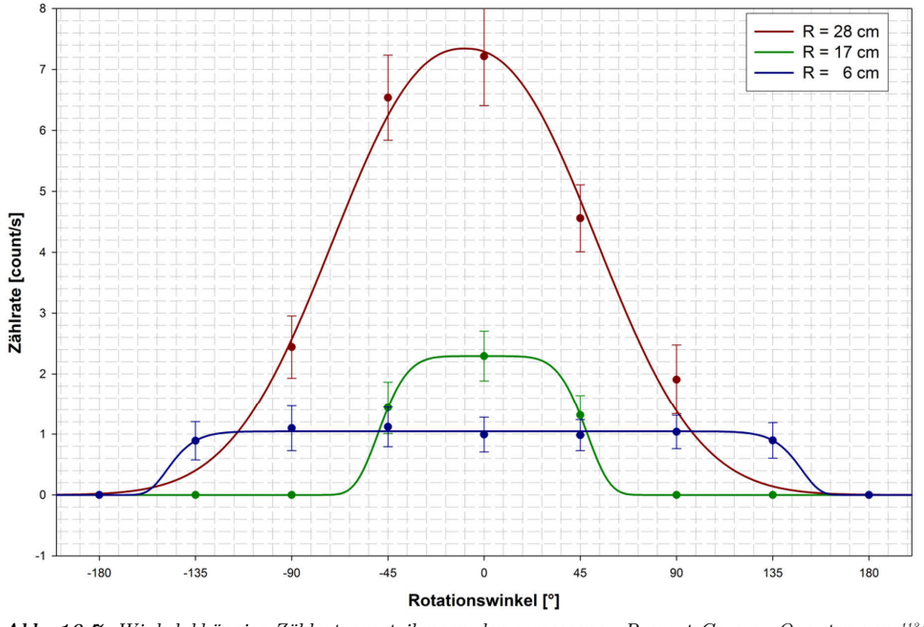


Abb. 10.7: *Winkelabhängige Zählratenverteilungen der gemessenen Prompt-Gamma-Quanten von ^{113}Cd bei 651,2, keV für verschiedene Radialabstände R und bei der Höhe H = 43 cm.*

Zählratenverteilung für die Positionierung des Cadmiumblechs auf der oberen Ebene

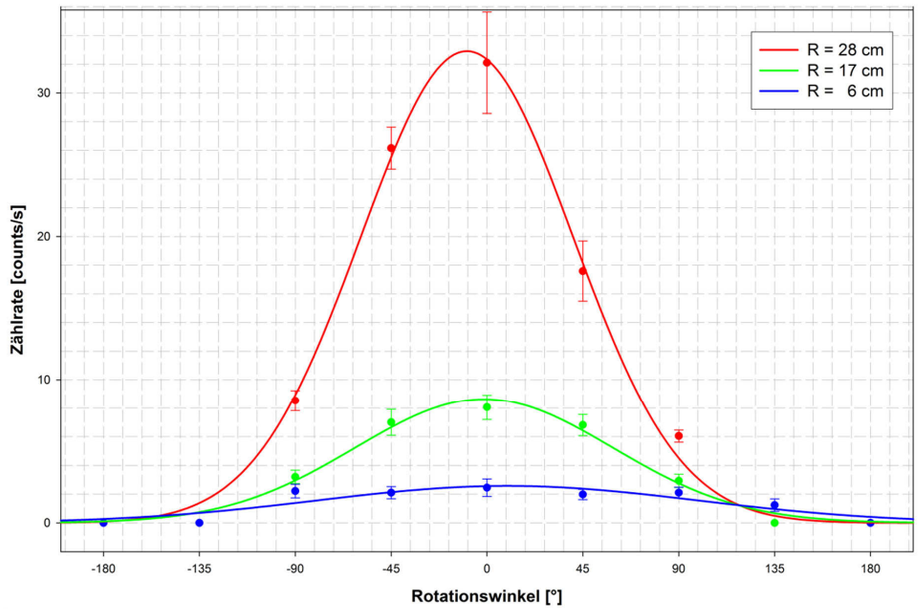


***Abb. 10.8**: Winkelabhängige Zählratenverteilungen der gemessenen Prompt-Gamma-Quanten von ^{113}Cd bei 558,3 keV für verschiedene Radialabstände R und bei der Höhe H = 73 cm.*

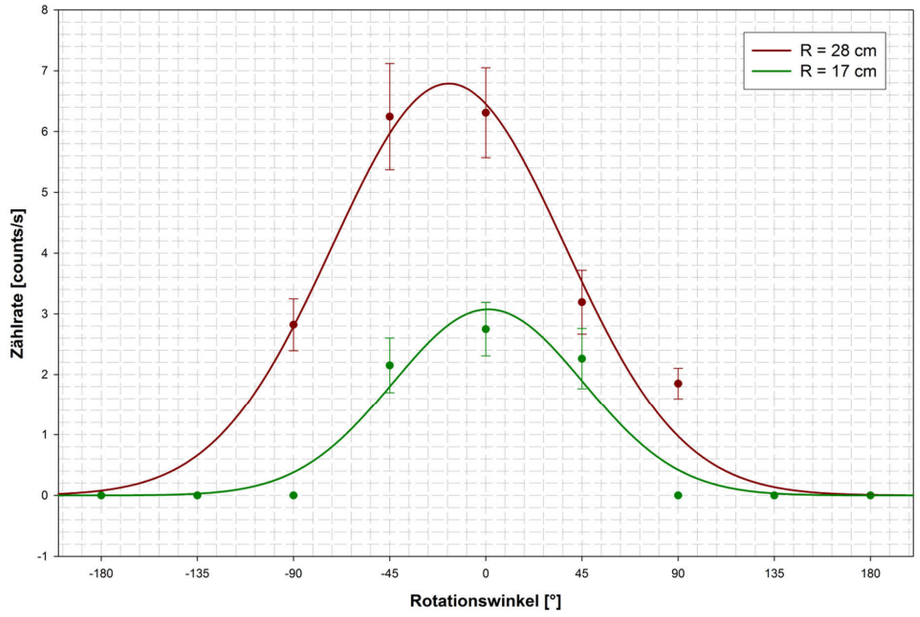


***Abb. 10.9:** Winkelabhängige Zählratenverteilungen der gemessenen Prompt-Gamma-Quanten von ^{113}Cd bei 651,2, keV für verschiedene Radialabstände R und bei der Höhe H = 73 cm.*

Bei den winkelabhängigen Messungen und der Positionierung des Cadmiumblechs in den drei Fassebenen wurden bei der Gamma-Energie von 558,3 keV bei einem Rotationschritt beginnend von der unteren Ebene die maximalen Zählraten von 27,2 ± 1,9 s^{-1}, 36,7 ± 1,5 s^{-1} und 32,8 ± 3,5 s^{-1} gemessen. Setzt man den Wert der mittleren Ebene als Referenz an, so ist die gemessene Zählrate auf der unteren Ebene 25,9 % und auf der oberen Ebene 10,6 % geringer.

Es ist jedoch zu beachten, dass bei diesen gemessenen Zählraten die Abstände zwischen den Schwerpunkten des Cadmiumblechs und dem Detektor nicht gleich sind. Berücksichtig man diesen Einfluss beim Bezug auf den Referenzwert, so ist die gemessene Zählrate auf der unteren Ebene 8,5 % geringer und auf der oberen Ebene 2,8 % höher als die Referenzzählrate. Die Abweichung zwischen Referenzwert und der Zählrate bei Positionierung des Cadmiumblechs auf der oberen Ebene liegt innerhalb der Fehlerspannbreite der gemessenen Zählrate. Die Abweichung von 8,5 % zwischen Referenzwert und der Zählrate bei Positionierung des Cadmiumblechs auf der unteren Ebene liegt geringfügig oberhalb der Fehlerspannbreite der gemessenen Zählrate.

Aus der Analyse der Zählraten kann abgleitet werden, dass der Neutronenfluss auf der dem Neutronengenerator zugewandten Seite entlang der Symmetrieachse des Fasses nur geringfügig variiert. Alleinig auf der unteren Fassebene muss ein geringerer Neutronenfluss vorhanden sein, der die oben genannte Abweichung erklärt. Der Gradient im thermischen und epithermischen Neutronenfluss zwischen der mittleren Fassebene und der unteren Fassebene liegt bei maximalem Radialabstand in einem dem Detektor zugewandten Bereich jedoch unter 10 %.

Der Grund für die Inhomogenität im Neutronenfluss im unteren Bereich der Betonmatrix ist die Konzipierung der Bestrahlungskammer. Aufgrund der beschränkten Deckenhöhe im Bestrahlungsraum konnte unterhalb des Fasses nicht die gleiche Graphitwandstärke zur Neutronenreflexion wie zu den seitlichen Wandungen oder nach oben hin verwendet werden. Während die seitlichen Wandungen der Bestrahlungskammer eine Stärke von 40 cm aufweisen und die Decke inkl. CFK-Deckenplatte 32 cm stark ist, befindet sich unterhalb des Fass nur ein 4 cm starker Fassdrehtellers aus CFK, der Rundschalttisch und ein Boden aus Schwerbeton. Nur um den Rundschalttisch herum wurde bis zu den seitlichen Wandungen Graphit mit einer Stärke von 10 cm - 15 cm verbaut.

Unabhängig von der Höhe bei der Positionierung des Cadmiumblechs wird bei den winkelabhängigen Messungen eine Asymmetrie zwischen den gemessenen Zählraten festgestellt, wenn sich das Cadmiumblech auf der dem Neutronengenerator zugewandten Seite oder der abgewandten Seite befindet. Der relative Unterschied in den Zählraten ist abhängig vom Radialabstand des Cadmiumblechs. Bei maximalem Radialabstand beträgt die Differenz in den gemessenen Zählraten auf der mittleren Fassebene bei der Gamma-Energie von 558,3 keV zwischen den Rotationsschritten +45° und -45° ca. 34 %. Dies belegt, dass die Inhomogenität im Neutronenfluss innerhalb einer horizontalen Fassebene größer ist als entlang der Symmetrieachse des Fasses.

Als Approximationsfunktion für die winkelabhängigen Zählratenverteilungen in den Abb. 10.4 bis 10.9 wird eine modifizierte Gauß-Funktion verwendet:

$$Z(\vartheta) = Z_0 \cdot e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{|\vartheta-\vartheta_0|}{\sigma}\right)^c} \tag{10.1}$$

Die modifizierte Gauß-Funktion approximiert die Zählratenverteilungen bei der Überlagerung der verschiedenen physikalischen Effekte am besten. Die detaillierte Beschreibung, um welche physikalischen Effekte es sich handelt, befindet sich in Kapitel 11.3.

In der Gleichung der modifizierten Gauß-Funktion ist Z_0 die Amplitude der Zählratenverteilung und ϑ_0 der Schwerpunkt der Verteilung. Die Streuung der Verteilungsfunktion wird durch die Streuparamater σ und c beschrieben. Eine Variation einer modifizierten Gauß-Funktion durch den Funktionsparameter c, wie in Abb. 10.10 dargestellt, hat bei konstanter Standardabweichung σ zur Folge, dass die Funktion an ihrem Scheitelpunkt spitzer oder stumpfer wird. Da der Funktionsparameter c im Exponenten steht, ist der Einfluss auf eine winkelabhängige Zählrate, die einen größeren Winkelunterschied von der maximalen Zählraten aufweist, deutlich größer als Zählraten, die nur geringe Winkelunterschiede von der maximalen Zählrate entfernt sind.

Die experimentellen Untersuchungen haben bei einer Aktivierung einer Elementakkumulation ergeben, dass bei größeren Radialabständen oft nur fünf Zählraten aus den acht winkelabhängigen Messungen für einen Fit der Zählratenverteilung zur Verfügung stehen. Ursache hierfür kann eine niedrige Energie der aus der Elementakkumulation emittierten Gamma-Quanten, ein niedrigerer (n,γ)-Wirkungsquerschnitt der Elementakkumulation oder eine stark abschirmende Verfüllmatrix sein.

In Abb. 10.11 werden die Funktionswerte der modifizierten Gauß-Funktion bei konstanten Funktionsparametern c, a, y_0, ϑ und variabler Standardabweichung σ aufgetragen. Die Bedeutsamkeit der Standardabweichung auf den Funktionswert der modifizierten Gauß-Funktion nimmt linear mit dem Winkelabstand von dem maximalen Funktionswert zu. Dieser Effekt wird durch den Streuparameter c potenziert.

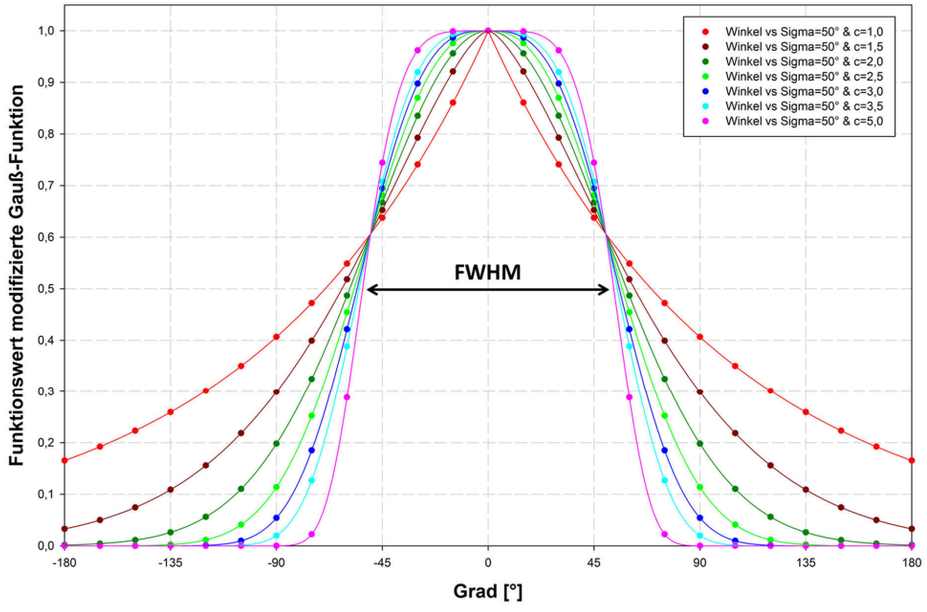


Abb. 10.10: *Modifizierte Gauß-Funktionen bei konstanten Funktionsparametern* a, y_0, ϕ, ϑ *und Variation des Funktionsparameters* c .

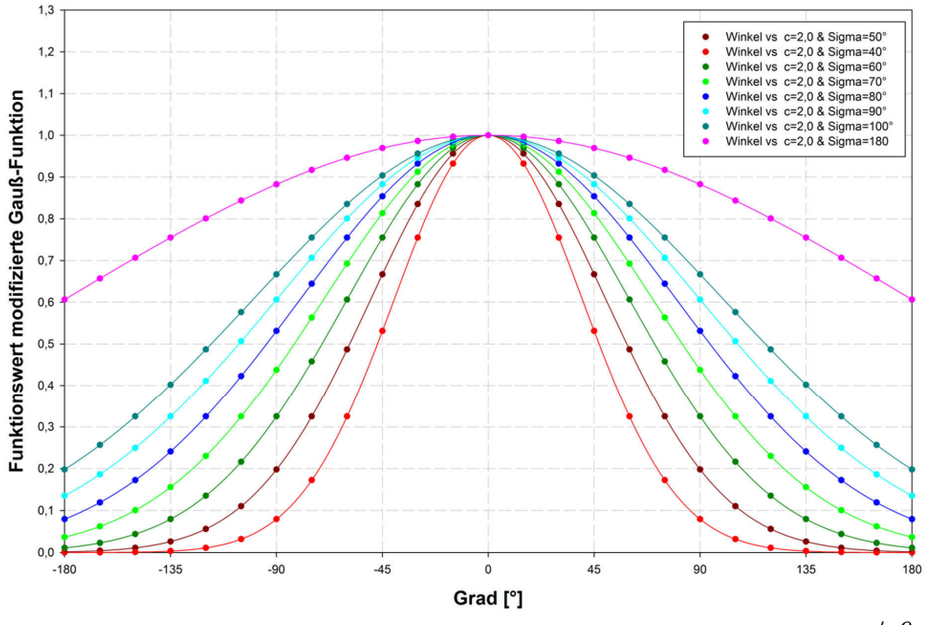


Abb. 10.11: Modifizierte Gauß-Funktionen bei konstanten Funktionsparametern a, y_0, ϕ, ϑ und Variation des Funktionsparameters σ .

Um die Streuung der Zählratenverteilungen handhabbarer durch nur eine Größe zu beschreiben, wird die „Halbe-Auflösung“ eingeführt. Die „Halbe-Auflösung“ ist beim Maximum der Verteilungsfunktion die Hälfte der Differenz zwischen den beiden Argumentwerten, für welche die Funktionswerte auf die Hälfte des Maximums abgesunken sind $\Delta\vartheta_{1/2} = 0{,}5 \cdot FWHM$ (FWHM - Full Width at Half Maximum). Die „Halbe-Auflösung“ wird aus den Streuparamatern der modifizierten Gauß-Funktion folgendermaßen berechnet:

$$\Delta\vartheta_{1/2} = \sigma \cdot \left(2 \cdot \ln(2)\right)^{1/c} \tag{10.2}$$

Die Fitparameter sowie das mittlere Bestimmtheitsmaß der Approximationsfunktionen sind für die gemessenen Zählratenverteilungen bei der Gamma-Energie von 558,3 keV in Tab. 10.1 und bei der Gamma-Energie von 651,2 keV in Tab. 10.2 aufgeführt.

Tab. 10.1: *Fitparameter der modifizierten Gauß-Funktionen als Approximationsfunktionen der gemessenen winkelabhängigen Zählratenverteilungen des Cadmiums bei einer Energie von 558,3 keV.*

Radialabstand [cm]	**Höhe** [cm]	**Z_0** [s^{-1}]	ϑ_0 [°]	**σ** [°]	**c**	$\Delta\vartheta_{1/2}$ [°]	**R^2**
28	6	27,18(67)	4,44(1,18)	52,88(1,89)	2,30(15)	60,9	0,9984
17	6	6,25(30)	-0,39(2,75)	64,44(4,79)	2,13(28)	75,1	0,9948
6	6	1,89(19)	-34,15(3,4)	24,90(2,5)	24,90(2,5)	90,9	0,9993
28	43	36,72(1,45)	-9,53(1,76)	50,92(3,08)	2,20(25)	59,0	0,9975
17	43	8,55(71)	-9,35(2,62)	65,99(8,19)	2,38(59)	75,7	0,9857
6	43	3,60(36)	-3,84(7,88)	95,86(24,22)	1,00(35)	136,6	0,9628
28	73	32,77 (1,17)	-9,40 (1,59)	50,33 (2,88)	2,03 (20)	59,0	0,9977
17	73	7,87 (18)	-,141 (1,23)	72,78 (2,29)	3,19 (31)	80,7	0,9988
6	73	2,17 (18)	4,39 (-9,0)	130,25 (32,9)	40,96 (14,3)	131,3	0,9927

Tab. 10.2: *Fitparameter der modifizierten Gauß-Funktionen als Approximationsfunktionen der gemessenen winkelabhängigen Zählratenverteilungen des Cadmiums bei einer Energie von 651,2 keV.*

Radialabstand [cm]	**Höhe** [cm]	**Z_0** [s^{-1}]	ϑ_0 [°]	**σ** [°]	**c**	$\Delta\vartheta_{1/2}$ [°]	**R^2**
28	6	6,85 (73)	-17,46 (4,14)	53,49 (9,82)	1,94 (57)	63,3	0,9866
17	6	2,75	0,76	50,81	6,80	53,3	1,0000
28	43	7,34(37)	-9,03(2,49)	58,88(4,39)	2,30(33)	67,9	0,9952
17	43	2,29	-0,70	44,83	5,65	47,5	1,0000
28	73	5,39(31)	11,29(2,76)	58,69(4,40)	3,02(63)	65,4	0,9936
17	73	2,3	2,10	41,61	5,12	44,4	1,0000

10.3 Lokalisierung räumlich konzentrierter Elemente

Im vorigen Kapitel wurde die Korrelation zwischen einer räumlich konzentrierten Elementmasse und der gemessenen winkelabhängigen Zählratenverteilung untersucht. Die Streuung einer winkelabhängigen Zählratenverteilung, beschrieben durch die Streuparamater σ und c, ist bei einer festgelegten integralen Messgeometrie abhängig von:

- dem Radialabstand der räumlich konzentrierten Elementmasse,
- der Gamma-Abschwächung durch die Abfallmatrix,
- der Gamma-Abschwächung durch die Fasswandung,
- der Energie die nachgewiesenen Gamma-Quanten und
- der Inhomogenität im Neutronenfluss innerhalb einer horizontalen Fassebene.

Sensitivitätsanalysen zeigen, dass der Einfluss auf die Streuung der Zählratenverteilungen von der Gamma-Abschwächung durch die Fasswandung bei einer Wandstärke von ca. 1,5 mm vernachlässigbar ist. Die Abschirmlänge der Gamma-Quanten durch die Fasswandung variiert in Abhängigkeit des Rotationswinkels wenig. Auch eine relevante Bandbreite von Massenschwächungskoeffizienten sowie Dichten von Stahlwerkstoffen, die Einfluss auf die Abschirmung haben, existiert nicht.

Die Gamma-Abschwächung durch die Abfallmatrix und die Energie der Gamma-Quanten der Zählratenverteilungen haben signifikanten Einfluss auf die Streuung einer Zählratenverteilung. Eine stark abschirmende Abfallmatrix bewirkt eine geringere Streuung der Zählratenverteilung. Der Peak der Zählratenverteilung wird schärfer. Eine hohe Energie der Gamma-Quanten bewirkt im Gegensatz, dass die Abfallmatrix mit den Gamma-Quanten weniger wechselwirkt und die Streuung der Zählratenverteilung zunimmt. Die Inhomogenität im Neutronenfluss innerhalb einer horizontalen Fassebene hat ebenfalls einen starken Einfluss auf die Streuung einer Zählratenverteilung.

Bei der mit Cadmium durchgeführten Korrelationsstudie wurde nur der Radialabstand der räumlich konzentrierten Elementmasse verändert. Die anderen zuvor genannten Parameter, wie z. B. die Abfallmatrix aus Beton, blieben konstant. Die durch die Formkörper modular aufgebaute Betonmatrix hat zwar eine geringere mittlere Dichte von 1,02 g/cm^3, jedoch sind die vom Cadmium gemessenen Prompt-Gamma-Quanten bei 558,3 keV und 651,2 keV niederenergetisch. In realen radioaktiven Abfällen hat die Abfallmatrix oft eine höhere Dichte, jedoch emittieren andere wassergefährdende Stoffe auch höherenergetische Gamma-Quanten. Cadmium ist also in Kombination mit der Betonmatrix ein geeignetes Testmaterial für die Studie. Zwischen der bei Cadmium festgestellten Streuung der gemessenen Zählratenverteilung, definiert durch die Halbe-Auflösung und den Radialabstand der Cadmiumprobe, besteht der in Abb. 10.12 dargestellte Zusammenhang.

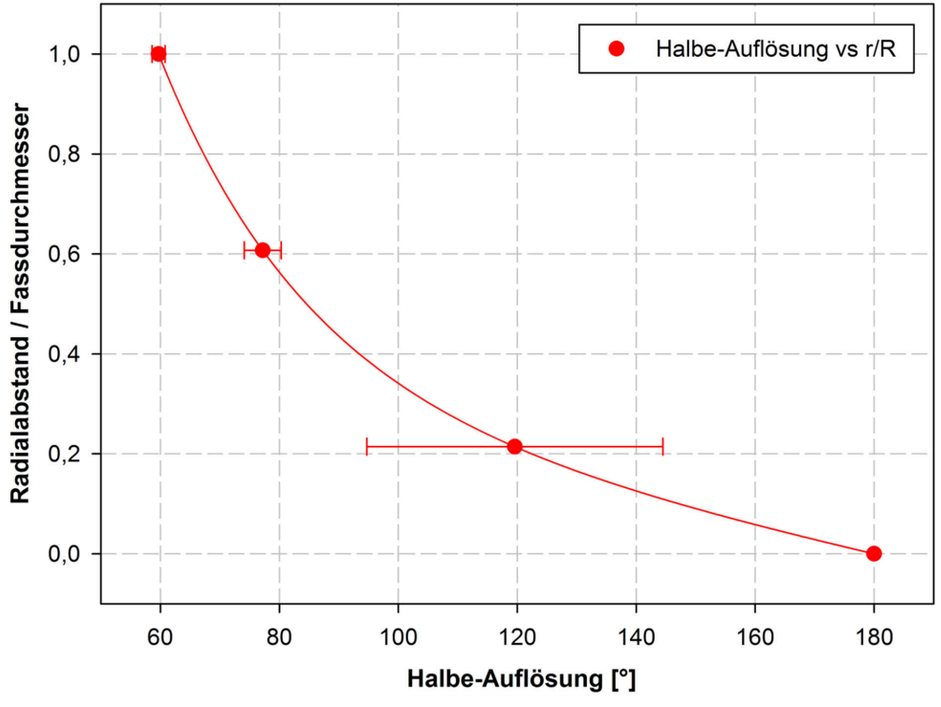


Abb. 10.12: *Korrelation zwischen der Streuung einer modifizierten Gauß-Funktion und dem Verhältnis Radialabstands r einer Elementkonzentration zu Fassradius R.*

Die in Abb. 10.10 dargestellte Approximationsfunktion kann durch folgende Exponentialgleichung beschrieben werden:

$$\frac{r}{R}\left(\Delta\vartheta_{1/2}\right)=\left(\frac{r}{R}\right)_0+a\cdot e^{-b\cdot\Delta\vartheta_{1/2}}+c\cdot\Delta\vartheta_{1/2} \tag{10.3}$$

In Gl. 13.3 ist r der Radialabstand der Cadmiumprobe und R der Fassradius. Durch die Studie und die in Abb. 10.10 dargestellte Analyse wurden die folgenden Funktionsparameter experimentell bestimmt: $\left(\frac{r}{R}\right)_0=0,4547, a=7,3562, b=0,0394$ und $c=-0,0026$.

Für den Fall einer Betonmatrix und den inhomogenen Neutronenfluss, der sich in dieser Matrix ausbildet, ist die Bestimmung des mittleren Radialabstands einer räumlich konzentrierten Elementmasse r anhand der bestimmten Halben-Auflösung von einer gemessenen Zählratenverteilung gemäß Gl. 10.3 möglich. Der Fehler auf dem Wert r/R beträgt:

$$d\left(r/R\right)=\left[\left[-a\cdot b\cdot e^{-b\cdot\Delta\vartheta_{1/2}}+c\right]^2 d\Delta\vartheta_{1/2}{}^2\right]^{1/2} \tag{10.4}$$

Der Fehler entspricht der ersten Ableitung der Gl. 10.3 und ist von der Streuung der Zählratenverteilung abhängig. Bei einer Steigung von -1 ist die Funktion zur Bestimmung des Radialabstands anhand der Streuung der gemessenen Zählratenverteilung am präzisesten. Je mehr von diesem Wert abgewichen wird, desto ungenauer ist das Verfahren. Bei kleinen oder großen Radialabständen weist die Bestimmung des Radialabstands anhand Gl. 10.3 die größten Fehler auf. Insgesamt müssen bzgl. der Bestimmung der Gesamtunsicherheit bei der Bestimmung des Radialabstands auch die Unsicherheiten auf den Fitparametern der Approximationsfunktionen der gemessenen winkelabhängigen Zählratenverteilungen berücksichtigt werden. Diese Unsicherheiten sind bei kleinen Radialabständen am größten.

Mit der in Gl. 10.3 beschriebenen Exponentialgleichung wurden die jeweiligen Radialabstände r einer Elementakkumulation anhand der Fitparameter der modifizierten Gauß-Funktionen der gemessenen winkelabhängigen Zählratenverteilungen des Cadmiums bei einer Energie von 558,3 keV bestimmt. Die Ergebnisse für die 9 Positionierungen des Cadmiumblechs sind in Tab. 10.3 aufgeführt. Im Durchschnitt werden für die verschiedenen Höhenpositionen Radialabstände von 28,06 cm, 17,10 cm und 6,75 cm bestimmt. Dies entspricht Abweichungen zu den realen Positionierungen der Cadmiumbleche bzgl. des Radialabstands von 0,21 % (r = 28 cm), 0,58 % (r = 17 cm) und 12,5 % (r = 6 cm). Alleinig bei geringen Radialabständen weist die Zuverlässigkeit des Verfahrens Schwächen auf. Diese Schwächen können durch einen konservativen Ansatz in Abhängigkeit des Radialabstands ausgeglichen werden. So könnte z. B. bei Radialabständen unter einem Grenzabstand (z.B. r < 7 cm) die konservative Annahme getroffen werden, dass sich die Elementakkumulation im Fassmittelpunkt befindet.

Tab. 10.3: *Berechnung des Radialabstands r einer Elementakkumulation anhand der Fitparameter der modifizierten Gauß-Funktionen als Approximationsfunktionen der gemessenen winkelabhängigen Zählratenverteilungen des Cadmiums bei einer Energie von 558,3 keV.*

Radialabstand [cm]	**Höhe** [cm]	**$\Delta\varphi_{1/2}$** [°]	**r/R ($\Delta\varphi_{1/2}$)** [cm/cm]	**r** [cm]
28	6	60,9 ± 2,25	0,965 ± 0,065	27,02 ± 1,82
17	6	75,1 ± 5,78	0,644 ± 0,101	18,03 ± 2,83
6	6	90,9 ± 43,13	0,426 ± 0,458	11,93 ± 12,8
28	43	59,0 ± 3,70	1,021 ± 0,114	28,58 ± 3,19
17	43	75,7 ± 9,74	0,634 ± 0,168	17,75 ± 4,70
6	43	136,6 ± 37,03	0,138 ± 0,144	3,86 ± 4,03
28	73	59,0 ± 3,50	1,021 ± 0,108	28,58 ± 3,02
17	73	80,7 ± 2,67	0,554 ± 0,039	15,51 ± 1,09
6	73	131,3 ± 68,99	0,160 ± 0,289	4,48 ± 8,09

Die mittels der Cadmiumprobe in einer Betonmatrix abgeleitete Bestimmungsmethode für den Radialabstand einer Elementkonzentration ist auf andere Stoffe übertragbar. Hierbei ist jedoch zu beachten, dass der energieabhängige Gamma-Massenschwächungskoeffizient für Beton (μ_{Beton}) bei 558,3 keV ca. 0,08 cm^2/g beträgt und die Betonmatrix eine mittlere Dichte (ρ_{Beton}) von 1,02 g/cm^3 aufweist. Hieraus resultiert ein makroskopischer Wirkungsquerschnitt der Gamma-Strahlung für Beton

von 0,078 cm^{-1}. Ist bei einer anderen Betonmatrix der makroskopische Wirkungsquerschnitt ähnlich, so ist das Verfahren zur Bestimmung des Radialabstands einer räumlich konzentrierten Elementmasse anhand der Gl. 10.3 und den angegebenen Funktionsparameter unabhängig vom Element geeignet. Eine Übertragbarkeit des Verfahrens auf andere Matrices ist ebenfalls möglich, jedoch muss hierfür die Inhomogenität im Neutronenfluss für diese Matrix bestimmt werden und in Abhängigkeit der Abweichungen im Neutronenfluss zur untersuchten Betonmatrix die Funktionsparameter der Gl. 10.3 ggf. angepasst werden. Die Inhomogenität im Neutronenfluss in einer Betonmatrix wird im folgenden Kapitel analysiert.

10.4 Inhomogener Neutronenfluss in der Betonmatrix

Durch die Korrelationsstudie wurde nachgewiesen, dass beim MEDINA-Analyseverfahren mit acht winkelabhängigen Messungen die Aktivierung eines räumlich konzentrierten Elements mit anschließender prompter Gamma-Emission eine Zählratenverteilung verursacht, die durch eine modifizierte Gauß-Funktion gut approximiert werden kann. Anhand der Streuung dieser modifizierten Gauß-Funktion, definiert durch die Halbe-Auflösung, kann der Radialabstand einer Elementkonzentration bestimmt werden.

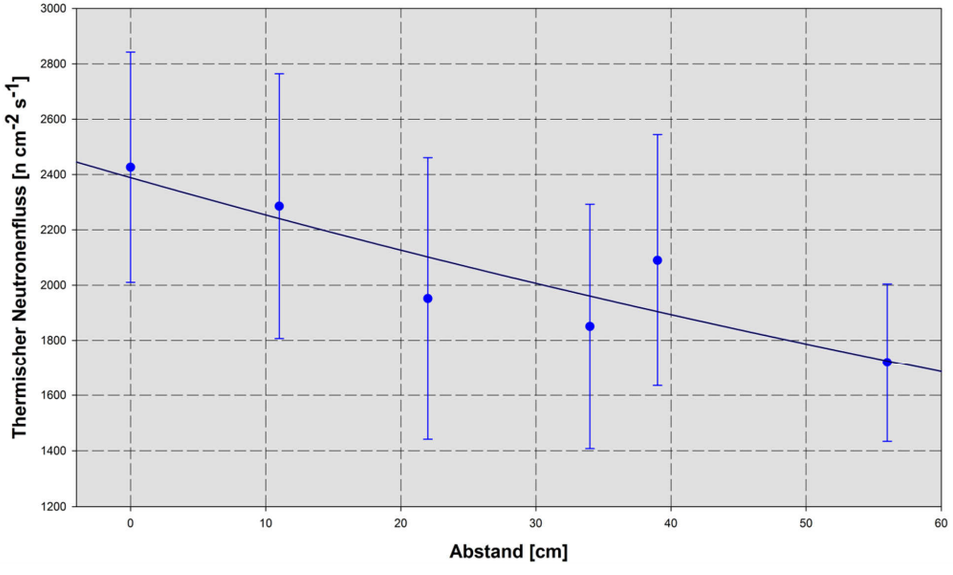


Abb. 10.13: *Thermischer Neutronenfluss in einem 200-l-Fass 73 cm oberhalb des Fassbodens entlang einer Achse zwischen der Position an der Fasswandung mit dem größten Neutronenfluss und dem Fassmittelpunkt.*

Die Studie zeigt eine Asymmetrie der Zählratenverteilung, begründet dadurch, dass der Neutronenfluss in der Abfallmatrix inhomogen ist und in der Nähe des Neutronengenerators maximal zu sein scheint. Vergleichbare Ergebnisse zeigen die nuklearphysikalischen Simulationen der MEDINA-Testeinrichtung (siehe Abb. 5.17). Aufgrund der bekannten Abschwächung der Gamma-Strahlung durch die Betonmatrix und die Stahlwandung sowie der gemessenen Zählraten der Prompt-Gamma-Quanten vom Cadmium kann der thermische und epithermische Neutronenfluss an 15 Positionen im Fass unter Verwendung von Gl. 8.4 bestimmt werden. In Abb. 10.13 wird der Neutronenfluss entlang der Achse zwischen der Position an der Fasswandung mit dem höchsten Neutronenfluss und dem Fassmittelpunkt für die obere Fassebene dargestellt. Bei einem Abstand von 56 cm ist das 200-l-Fass entlang der Achse durchquert. Der thermische Neutronenfluss nimmt entlang der Achse von 2420 ± 420 n $cm^{-2}s^{-1}$ auf 1720 ± 289 n · $cm^{-2}s^{-1}$ ab. Dies entspricht einer Reduktion von ca. 29 %. Die mittlere und untere Fassebene zeigen einen vergleichbaren Neutronenflussgradienten auf. Die Gradienten im thermischen Neutronenfluss in einer horizontalen Fassebene sind somit größer als entlang der Höhenachse eines 200-l-RRW-Fasses. In Abb. 10.14 ist der Konturplot des experimentell bestimmten Neutronenflusses gemittelt über die drei Fassebenen dargestellt.

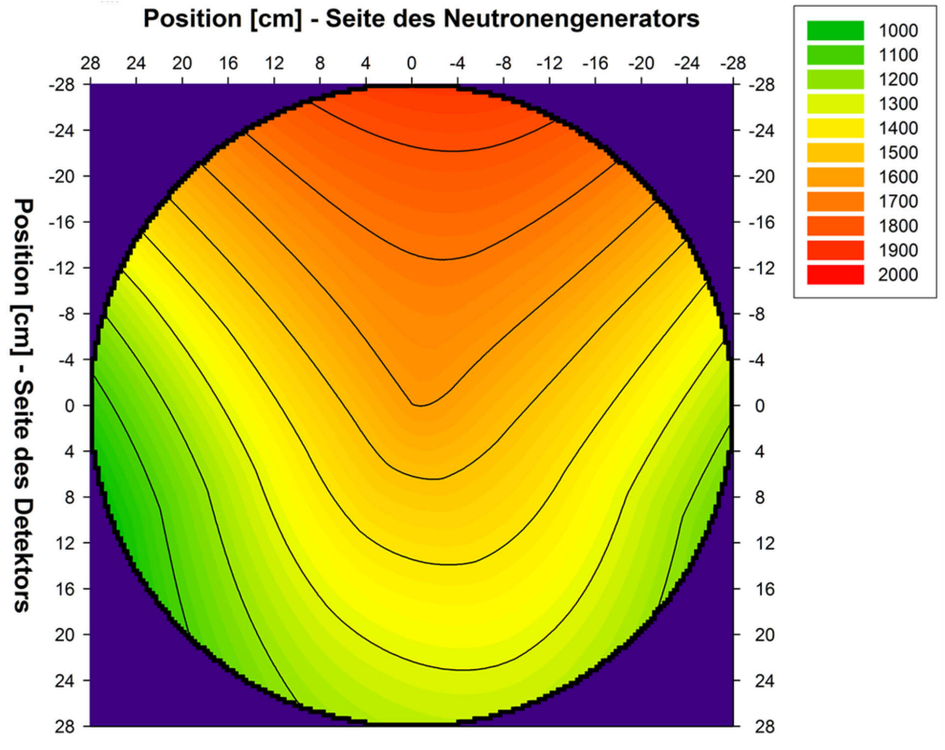


Abb.: 10.14: *Konturplot des horizontalen thermischen Neutronenflusses über die gesamte Fasshöhe gemittelt. Der Konturplot basiert auf den experimentellen Daten der Aktivierungsanalyse einer Cadmiumprobe innerhalb einer Betonmatrix bei verschiedenen Radialabständen und Höhenpositionen. Die Einheit des dargestellten Neutronenflusses besitzt die Einheit [$cm^{2}s^{-1}$].*

Der Konturplot weist aufgrund der 15 experimentellen Messpositionen nicht den Detailierungsgrad beim Verlauf der Isolinien des Neutronenflusses auf, wie der Konturplot einer mittels MCNP simulierten Neutronenfluenz.

Es sind jedoch zwei Effekte zu erkennen: Entlang der Achse zwischen Neutronengenerator und Fassmittelpunkt bildet sich ein Kanal mit einer Erhöhung des Neutronenflusses. Dieser Kanal ist dadurch begründet, dass die Neutronen, die den Neutronengenerator entlang der beschriebenen Achse verlassen, nicht einer Abbremsung durch Graphit unterliegen. Der Neutronengenerator befindet sich in einer zylindrischen Aussparung aus Graphit, die nur einen 2 mm größeren Durchmesser aufweist als der Durchmesser des Neutronengenerators. Das Tritium-Titantarget des Neutronengenerators ist vom vorderen Ende des Neutronengenerators 15 cm entfernt. In Anhängig ihres Emissionswinkels unterliegen die Neutronen somit auf dem Weg in die Abfallmatrix einer Abbremsung durch Graphit. Als zweites wird festgestellt, dass der Neutronenfluss auf der Seite, auf der der Detektor positioniert ist, geringfügig niedriger ist als auf der entgegengesetzten Seite. Zu erklären ist dies dadurch, dass die Wandungen der Bestrahlungskammer in Bezug zu Abb. 11.14 links vom Fass weiter entfernt ist, als auf der rechten Seite, auf der das Fass einen minimalen Abstand von nur 2 cm zur inneren Wandung hat. Von dieser Seite werden mehr Neutronen während der Moderation ins Fass gestreut bzw. reflektiert.

Kapitel 11

Quantifizierung der Elementmasse

Formel-Kapitel (nächstes) Abschnitt 11

Zusammenfassung

Basierend auf den im MEDINA-Messverfahren aufgenommenen Gamma-Spektren und deren Auswertung der winkelabhängigen Photopeakflächen werden die Zählratenverteilungen der jeweiligen Gamma-Quanten bestimmt. Die Analyse der Zählratenverteilung ist die Grundlage für die Quantifizierung der in einem 200-l-Fass enthaltenen Elemente. Homogen in einer Abfallmatrix verteilte Elemente erzeugen eine winkelunabhängige Zählratenverteilung. Elemente, die räumlich konzentriert in einer Abfallmatrix vorliegen, verursachen eine winkelabhängige Zählratenverteilung. Die Ausnahme bildet eine räumlich konzentrierte Elementverteilung, deren Schwerpunkt sich auf der Symmetrieachse des Fasses befindet. Die winkelabhängigen Zählratenverteilungen der nachgewiesenen Gamma-Quanten werden durch modifizierte Gauß-Funktionen approximiert. Anhand der Streuung der Approximationsfunktionen kann der mittlere Radialabstand und die mittlere Winkelposition einer räumlich konzentrierten Elementmasse festgestellt werden. Die Position einer räumlich konzentrierten Elementmasse wird benötigt, um den dortigen lokalen Neutronenfluss in der Abfallmatrix und die Abschirmung der aus der Elementmasse emittierten Gamma-Quanten zu berechnen. Die Bestimmung der axialen Position einer räumlich konzentrierten Elementverteilung ist aufgrund der integralen Fassmessung nicht möglich und wird in der systematischen Unsicherheit des Quantifizierungsverfahrens berücksichtigt. Das Quantifizierungsverfahren berücksichtigt sowohl die Gamma- und Neutronen-Abschwächung in der Abfallmatrix und der Fasswandung sowie die Gamma- und Neutronen-Selbstabschirmungseffekte einer mit Bezug auf die Abfallmatrix räumlich konzentrierten Elementmasse.

11.1 Verfahrensablauf zur Elementquantifizierung

Das MEDINA-Analyseverfahren basiert derzeit auf acht rotationsabhängigen Fassmessungen unter den Standardbestrahlungs- und Messparametern (siehe Tab. 5.7). Die Spektralanalyse der winkelabhängigen Gamma-Spektren ist Grundlage der Quantifizierung der bestrahlten Elementmassen. In Summe kann ein Spektrum über tausend Gamma-Peaks beinhalten. Die Berücksichtigung von Interferenzen bei der Spektralanalyse ist somit von großer Bedeutung. Der schematische Verfahrensablauf zur Quantifizierung der in einem 200-l-Fass enthaltenen Elementmassen ist in Abb. 11.1 dargestellt.



Abb. 11.1: *Verfahrensablauf der Elementquantifizierung mittels des MEDINA-Analyseverfahrens.*

Die Verfahrensweise des MEDINA-Analyseverfahrens wird in Tab. 11.1 abgebildet und nachfolgend detailliert beschrieben. Der in einem Gamma-Spektrum gefittete Peak wird durch die Lage seines Maximums, die Halbwertsbreite, die Nettofläche und die Untergrundfläche beschrieben.

In Abb. 11.2 wird mittels der Spektroskopie-Software GAMMA-W der Fit eines Prompt-Gamma-Peaks des Isotops ^{56}Fe bei einer Energie von 7278,8 keV dargestellt. Die Nettopeakfläche ist die Fläche zwischen der roten und der orangen Kurve. Die Untergrundfläche B ist die Fläche unterhalb der orangen Kurve, wobei die Schnittpunkte mit der roten Kurve die Anzahl der zu berücksichtigenden Kanäle für die Untergrundfläche begrenzen.

Tab. 11.1: *Vorgehensweise zur Elementquantifizierung mittels des MEDINA-Analyseverfahrens unterteilt in Arbeitsschritte (A), Prüfschritte (P) und wiederkehrende Prüfungen (WKP).*

Arbeitsschritt & Prüfschritte	**Beschreibung**
WKP1	Energie- und Effizienzkalibrierung der MEDINA-Testeinrichtung
P1	Radiologische Charakterisierung des 200-l-Fasses
P2	Akquisition von acht neutronen-induzierten winkelabhängigen Gamma-Spektren gemäß definierter Bestrahlungs- und Messparameter
P3	Abklinglagerung innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer
A1	Spektralanalyse - Gamma-Peaks fitten und Kenngrößen bestimmen
A2	Emittenten der Gamma-Quanten bestimmen und Kernreaktionen identifizieren (Qualitative Analyse zur Elementidentifizierung)
A3	Interferenzanalyse zur Bestimmung der Netto-Photopeakfläche
A4	Bestimmung des integralen thermischen und epithermischen Neutronenflusses
A5	Bestimmung der winkelabhängigen Zählratenverteilung für die jeweiligen Gamma-Quanten
A6	Im Fall einer winkelunabhängigen Zählratenverteilung – homogen verteilte Elementmasse quantifizieren
A7	Im Fall einer winkelabhängigen Zählratenverteilung diese durch eine modifizierte Gauß-Funktion mit fünf Parametern approximieren
A8	Winkelpositionen und mittlere Radialabstände der räumlich konzentrierten Elementmassen bestimmen
A9	Lokalen Neutronenfluss an den Positionen der räumlich konzentrierten Elementmassen bestimmen und die für die Neutronen und Gamma-Quanten relevante Abschirmlängen berechnen
A10	Räumlich konzentrierte Elementmassen quantifizieren
A11	Plausibilitätsprüfung der bestimmten Elementmassen

Die zur Analyse verwandte Spektroskopie-Software GAMMA-W kann automatisch sämtliche Peaks eines Gamma-Spektrums fitten. Als Ergebnis erhält man die Ausgabe der Gamma-Energie im Schwerpunkt der Gamma-Peaks, die Netto- sowie Untergrundflächen und die Fehlerspannbreite der Ausgabeparameter. Jedoch ist weder GAMMA-W noch eine andere auf dem Markt befindliche Spektroskopie-Software für eine vollautomatische Analyse von P&DGNAA-Spektren ausgelegt und validiert. Besonders die Halbwertsbreitenkalibrierung, die die Software benötigt, ist ein sensibler Eingangsparameter. Aufgrund des großen Energiebereichs des Spektrums reicht die Halbwertsbreite der analysierten Gamma-Peaks von ca. 3 keV bis 12 keV. Zusätzlich müssen bei einer Spektralanalyse in Abhängigkeit des Energiebereichs unterschiedliche Funktionen für die Bestimmung des Untergrunds verwendet werden. Aus diesen Gründen muss die durch eine Spektroskopie-Software ausgeführte Peak-Fittung manuell kontrolliert und angepasst werden (Arbeitsschritt A1).

Nachdem die Kenngrößen der Gamma-Peaks ermittelt sind, werden anhand der Gamma-Energien die Emittenten der Gamma-Quanten bestimmt und die abgelaufenen Kernreaktionen identifiziert (Arbeitsschritt A2). Die detektierten prompten und verzögerten Gamma-Quanten können durch die Aktivierung mittels thermischer, epithermischer, resonanter oder schneller Neutronen induziert worden

sein. Interferierende Gamma-Quanten können aus neutronen-induzierten Kernreaktionen mit dem Fassinhalt, dem Fasskörper, der MEDINA-Testeinrichtung (aktiver Untergrund) sowie von verzögerten Gamma-Quanten des radioaktiven Inventars (passiver Untergrund) herrühren. Das radioaktive Fassinventar bedingt vor einer MEDINA-Analyse eine radiologische Charakterisierung eines 200-l-Fasses (Prüfschritt P1), um den passiven Untergrund einer Messung zu ermitteln. Es besteht die Möglichkeit, dass detektierte Gamma-Quanten der gleichen Energie aus verschiedenen Kernreaktionen stammen. Alle neutronen-induzierten Kernreaktionen mit einer Schwellwertreaktion unterhalb von 14,1 MeV können möglich sein. Die genaueren Ausführungen hierzu befinden sich in Kapitel 4.

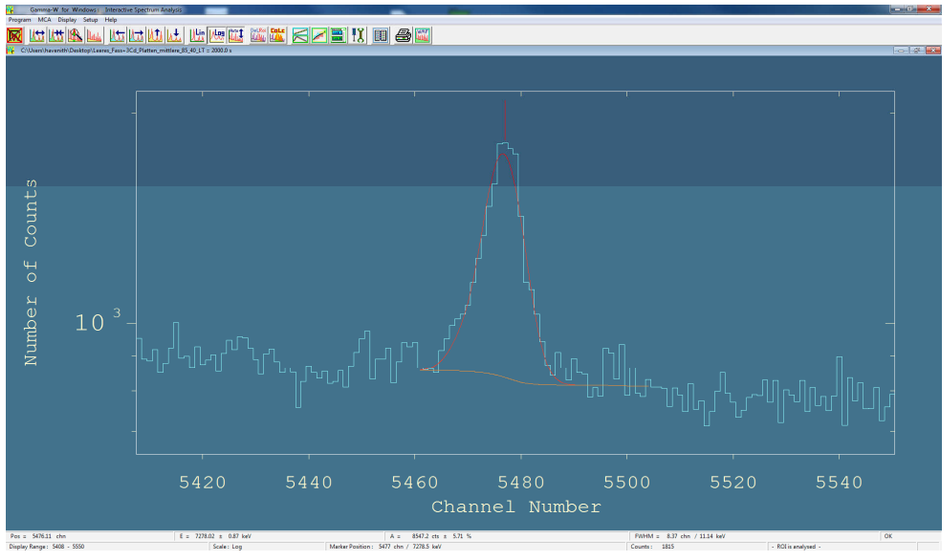


Abb. 11.2: *Mit der Software GAMMA-W gefitteter Gamma-Peak des Isotops ^{56}Fe bei 7278,8 keV.*

Alle Elemente außer Wasserstoff und Helium emittieren durch eine Neutronen-Aktivierung mehrere Gamma-Quanten, wobei die Wahrscheinlichkeit für ein jeweiliges Prompt-Gamma-Quant durch den partiellen Wirkungsquerschnitt beschrieben wird. Das Verhältnis der von einem Isotop bzw. Element emittierten Gamma-Quanten untereinander wird bei der Interferenzanalyse eines Gamma-Spektrums ausgewertet. Bei einer Interferenzanalyse muss die Photopeak-Fläche $P_{E_{\gamma,n}}$ von Gamma-Quant eines aktivierten Elements bei der Gamma-Energie $E_{\gamma,n}$ gleich dem Produkt des partiellen Wirkungsquerschnitts $\sigma_{E_{\gamma,n}}$ und der Photopeak-Effizienz bei der jeweiligen Gamma-Energie $\varepsilon_{E_{\gamma,n}}$ sein. Für das Verhältnis zweier prompter Gamma-Quanten emittiert von einem Isotop bzw. Element gilt demnach:

$$\frac{P_{E_{\gamma,1}}}{P_{E_{\gamma,2}}} = \frac{\sigma_{E_{\gamma,1}} \cdot \varepsilon_{E_{\gamma,1}}}{\sigma_{E_{\gamma,2}} \cdot \varepsilon_{E_{\gamma,2}}} \tag{11.1}$$

Bei Gl. 11.1 sind die Fehlerspannbreiten der Photopeak-Flächen $P_{E_{\gamma,1}}$ und $P_{E_{\gamma,2}}$ sowie die Unsicherheiten des partiellen Wirkungsquerschnittes und der Photopeak-Effizienz zur Erfüllung der Gleichung zu berücksichtigen. Ist die Gleichung innerhalb der Unsicherheiten nicht erfüllt, beinhalten die Photopeakflächen ggf. interferierende Peaks, wobei dann die jeweiligen Peakflächen einer Interferenzreaktion abgezogen werden müssen. Als Ergebnis der Interferenzkorrektur und der Berücksichtigung des aktiven und passiven Untergrundspektrums erhält man die Netto-Photopeakflächen der von einem Isotop bzw. Element emittierten Gamma-Quanten (Arbeitsschritt A3). Die Zählrate gemessener Gamma-Quanten bestimmt man, indem man die Nettopeakflächen durch den Zeitfaktor f_t, der von der Art der Aktivierung abhängt, dividiert (siehe Kapitel 4). Im Fall der PGNAA mit thermischen Neutronen ist der Zeitfaktor f_t die Akquisitionszeit der Gamma-Spektren. Die in der vorliegenden Arbeit aufgenommenen Spektren wurden manuell ausgewertet, wobei zu jeder Spektralanalyse eine wie oben beschriebene Interferenzanalyse gehört. Beinhalteten Photopeak-Flächen den Nachweis von interferierenden Gamma-Peaks, so wurde die Peakfläche gemäß Gl. 11.1 auf die jeweiligen Peaks aufgeteilt.

Im Rahmen des MEDINA-Projekts wurde eine automatisierte Auswertung und Analyse von P&DGNAA-Spektren entwickelt. Hierbei wurden in einer Software moderne Methoden des maschinellen Lernens, einem Fachgebiet der künstlichen Intelligenz, in Zusammenarbeit mit der Universität Maastricht auf die Spektralanalyse der P&DGNAA-Spektren angewandt. Die Ergebnisse sind in der Publikation „Development of an intelligent software for the identification and quantification of mass fractions based on the analysis of gamma-ray spectra“ aufgeführt/11-1/.

Als experimenteller Parameter wird der integrale thermische und epithermische Neutronenfluss im Fass über die Aktivierung der Fassmatrix oder den Fasskörper als Neutronenflussmonitor individuell für jede MEDINA-Messung bestimmt. Die Beschreibungen hierzu befinden sich in Kapitel 8.3 und 8.4 (Arbeitsschritt A4).

Sind die durch die Neutronen-Aktivierungs-Analyse bestimmten Zählraten eines identifizierten Elements winkelunabhängig, so ist das Element entweder homogen in der Abfallmatrix verteilt, oder eine räumlich ausgedehnte Elementkonzentrationen ist so verteilt, dass sich deren Schwerpunkt auf der Symmetrieachse des Fasses befindet. Die Quantifizierung einer homogen in der Fassmatrix verteilten Elementmasse wird in Kapitel 11.2 dargelegt (Arbeitsschritte A5 & A6).

Eine winkelabhängige Zählratenverteilung impliziert eine räumliche Konzentration einer Elementmasse im Fass. Die Quantifizierung einer räumlich konzentrierten Elementmasse in einer Abfallmatrix wird in Kapitel 11.3 geschildert (Arbeitsschritte A7 bis A10). Ist ein Element homogen und räumlich konzentriert in einer Fassmatrix verteilt, sind die Quantifizierungsverfahren additiv anzuwenden (Arbeitsschritte A6 & A8).

Zum Abschluss des MEDINA-Analyseverfahrens wird eine Plausibilitätsprüfung der bestimmten Massenanteile durchgeführt. Grundsätzlich muss gelten, dass die Summe der homogen und inhomogen verteilten Massen der Nettomasse des analysierten 200-l-Fasses entsprechen:

$$m_{Fass,brutto} = m_{Fass,tara} + \sum m_h + \sum m_k + \sum m_g \tag{11.2}$$

Die Taramasse des Fasses $m_{Fass,tara}$ ist in der Reststoff- bzw. Abfalldokumentation selbst bei einer schlechten Dokumentationslage meist aufgeführt oder kann ansonsten anhand des Fasstyps abgeleitet werden. Ergibt sich aus den bestimmten homogen und inhomogen verteilten Massenanteilen $\sum m_h$ und $\sum m_k$ und den hinzugerechneten Elementmassen $\sum m_g$ nicht die Nettomasse des Fasses, müssen die Ansätze einer homogenen bzw. inhomogenen Elementverteilung revidiert bzw. überarbeitet werden (Arbeitsschritt A11). In der Analyse hinzugerechnete Elementmassen $\sum m_g$ sind Massenanteile, die durch die durchgeführte Neutronen-Aktivierungs-Analyse nicht quantifiziert werden können. Beispielhaft ist das Element Sauerstoff, anhand der für die PGNAA mit thermischen Neutronen optimierten Bestrahlungs- und Messparameter (siehe Tab. 5.7), schwer quantifizierbar, weswegen die Massenanteile von oxidischen Verbindungen bei einer alleinigen Analyse der durch thermische Neutronen induzierten Kernreaktion über stöchiometrische Verhältnisse berechnet werden müssen. Der Massenanteil des Sauerstoffs könnte also bei Unterstellung bekannter oxidischer Verbindungen hinzugerechnet werden. Hierdurch erhöht sich jedoch die Unsicherheit des Quantifizierungsverfahrens.

Alternativ lässt sich der Massenanteil des Sauerstoffs durch die mittels schneller Neutronen induzierte Kernreaktion $^{16}O(n,p)^{16}N$ bestimmen /1-5/. Das Radionuklid ^{16}N zerfällt mit einer Halbwertszeit von 7,13 s unter der Emission von Gamma-Quanten mit einer Energie von 6128,6 keV. Zur Detektion dieser verzögerten Gamma-Quanten können die Bestrahlungs- und Messparameter der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse angepasst werden, um die Spektrenakquisition zu optimieren. Erforderlich für die Quantifizierung der Massenanteile von Sauerstoff über die genannte Kernreaktion induziert mittels schnellen Neutronen ist die Kenntnis über den integralen schnellen Neutronenfluss in der Abfallmatrix.

11.2 Quantifizierung einer Elementmasse bei homogener Elementverteilung in einer Fassmatrix

Die Neutronen-Aktivierung von homogen in einer Fassmatrix verteilten Elementen führt beim MEDINA-Messverfahren zu einer winkelunabhängigen Zählratenverteilung der induzierten Gamma-Quanten. In jedem der aufgenommenen acht Gamma-Spektren wird durch die Neutronen-Aktivierung eines Elements bei der gleichen Energie eine innerhalb der Fehlerspannbreite gleiche Zählrate Z_{E_γ} bestimmt. Die Netto-Zählrate Z_{E_γ} wird durch die Division einer jeweiligen Nettopeak-Fläche P_{E_γ} durch den Zeitfaktor f_t bestimmt (siehe Kapitel 4).

Das Quantifizierungsmodell wird nachfolgend nur für den Fall der PGNAA mit thermischen und epithermischen Neutronen hergeleitet. Für die anderen Fälle der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse kann eine Herleitung analog geschehen. In Fall der PGNAA mit thermischen Neutronen ist der Zeitfaktor f_t gleich der Akquisitionszeit t. Für die Quantifizierung der homogen in der Fassmatrix verteilten Elementmasse kann folgende Gleichung verwendet werden (siehe Kap. 4 Fall 4, Gl. 4.21):

$$Z_{E_\gamma} = \frac{m_h}{M} \cdot N_A \cdot \varepsilon_{E_\gamma,M} \cdot \sum\left(\overline{\Phi}_i \cdot \sigma_{E_\gamma,i}\right) \tag{11.3}$$

Die Aktivierung einer in der Abfallmatrix homogen verteilten Elementmasse m_h geschieht durch die Summe der energieabhängigen Neutronenflüsse multipliziert mit den partiellen Wirkungsquerschnitten für eine Gamma-Emission in den jeweiligen Energiebereichen $\sum\left(\overline{\Phi}_i \cdot \sigma_{E_\gamma,i}\right)$. Die Bestimmung des integralen thermischen sowie epithermischen Neutronenflusses $\overline{\Phi}_{th}$ und $\overline{\Phi}_{epi}$ in der Fassmatrix geschieht durch die Aktivierung des Fasskörpers (siehe Kap. 8.3). Die molare Masse des Elements ist M und N_A ist die Avogadro-Konstante. Die Photopeak-Effizienz $\varepsilon_{E_\gamma,M}$ ist die integrale energieabhängige Photopeak-Effizienz für Gamma-Emissionen aus der Abfallmatrix (siehe Abb. 7.4).

Bei einer Aktivierung mittels thermischer und epithermischer Neutronen folgt:

$$Z_{E_\gamma} = \frac{m_h}{M} \cdot N_A \cdot \sigma_{E_\gamma,th} \cdot \overline{\Phi_{th}} \cdot \sigma_{E_\gamma,th} + \left(0,44 \cdot \sigma_{E_\gamma,th} + \sigma_{E_\gamma,epi}\right) \cdot \overline{\Phi_{epi}} \cdot \varepsilon_{E_\gamma,M} \tag{11.4}$$

Die partiellen Wirkungsquerschnitte für thermischen und epithermischen Neutroneneinfang $\sigma_{E_\gamma,th}$ und $\sigma_{E_\gamma,epi}$ sind validierte kernphysikalische Größen. Anhand des in Kap. 8 bestimmtem Verhältnisses zwischen thermischen und epithermischen Neutronenfluss innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer von:

$$\overline{\phi_{epi}} = \frac{\overline{\phi_{th}}}{5,32} \tag{11.5}$$

und der Kopplung der Gl. 11.4 mit der Gl. 11.5 erhält man die Gleichung zur Quantifizierung der in der Abfallmatrix homogen verteilten Massenanteile eines jeweiligen Elements (Arbeitsschritt A6):

$$m_h = \frac{M \cdot Z_{E_\gamma}}{N_A \cdot \overline{\Phi_{th}} \cdot (\sigma_{E_\gamma,th} + \frac{0,44 \cdot \sigma_{E_\gamma,th} + \sigma_{E_\gamma,epi}}{5,32}) \cdot \varepsilon_{E_\gamma,M}} \tag{11.6}$$

Zur Validierung werden die Elementmassen von Wasserstoff, Bor, Aluminium, Silizium, Kalium, Calcium und Titan in einer Betonmatrix gemäß dem beschriebenen Verfahren bestimmt. Die Betonmatrix befand sich im Inneren eines 200-l-RRW-Fasses, welches mit der MEDINA-Testeinrichtung gemessen wurde. Die Masse des Stahlfasses betrug 53,22 kg und die Masse der Betonmatrix 199,5 kg. Der experimentell bestimmte integrale thermische Neutronenfluss im Fasskörper beträgt (3375 ± 244) $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$. Der integrale thermische Neutronenfluss in der Betonmatrix beträgt (3179 ± 562) $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$ (siehe Tab. 8.6). Der integrale thermische Neutronenfluss im Fasskörper ist innerhalb der Fehlerspannbreiten somit gleich dem integralen thermischen Neutronenfluss in der Abfallmatrix und kann zur Quantifizierung der homogen in der Betonmatrix verteilten Elemente verwendet werden. Diese Schlussfolgerung ist in der vorliegenden Arbeit nur für eine Betonmatrix experimentell belegt worden. Bei der Quantifizierung von Elementgehalten in anderen Abfallmatrices muss die Zulässigkeit matrixabhängig verifiziert werden.

Die Elementzusammensetzung der zur Validierung verwendeten Betonmatrix ist in Tab. 6.2 angegeben. Nachdem die Elementmassen von Wasserstoff, Bor, Aluminium, Silizium, Kalium, Calcium und Titan gemäß Gl. 11.6 bestimmt wurden, wird die Masse der oxidischen Verbindungen berechnet. So liegt Calcium z. B. nicht in einer elementaren Form in der Matrix vor, sondern als Calciumoxid. Das Element Bor liegt als Bortrioxid (B_2O_3) vor. Die Massenanteile der Verbindungen, die mit dem MEDINA-Analyseverfahren bestimmt wurden, werden mit den Massenanteilen, die aus der Herstellerspezifikation bzw. den Analysen der Betonmatrix am Forschungsreaktor in Budapest bestimmt wurden, verglichen. Das Ergebnis der Gegenüberstellung ist in Tab. 11.2 aufgeführt. Nach der Nennung der Verbindung in der ersten Spalte werden in der zweiten und dritten Spalte die Massenanteile, die anhand der Analysen der Betonmatrix am Forschungsreaktor in Budapest /5-8/ ermittelt wurden, aufgeführt. In den Spalten vier und fünf werden die durch das MEDINA-Analyseverfahren bestimmten absoluten und relativen Massenanteile an der Abfallmatrix aufgeführt.

Tab. 11.2: Gegenüberstellung der quantifizierten Elementmassen einer Betonmatrix bei homogener Verteilung in der Fassmatrix.

Element	Masse gemäß Budapest-Analyse		Quantifizierung der Massenanteile durch MEDINA		Absolute Abweichung
	[kg]	[%]	[kg]	[%]	[%]
H_2O	24,94 ± 0,04	12,5 ± 0,18	22,66 ± 2,87	11,36 ± 1,44	-1,14
B_2O_3	0,060 ± 2,4E-7	0,0305 ± 0,0004	0,069 ± 0,012	0,034 ± 0,006	+0,0045
Al_2O_3	18,49 ± 0,03	9,27 ± 0,18	19,59 ± 4,71	9,82 ± 2,36	+0,55
SiO_2	73,82 ± 0,49	37,0 ± 0,67	78,05 ± 0,33	39,35 ± 0,17	+2,12
K_2O	3,33 ± 0,001	1,67 ± 0,04	2,99 ± 0,44	1,5 ± 0,22	-0,17
CaO	64,50 ± 0,46	32,33 ± 0,71	65,92 ± 7,27	33,04 ± 3,64	+0,71
TiO_2	0,86 ± 8,6E-5	0,43 ± 0,01	0,84 ± 0,34	0,42 ± 0,18	-0,01
Summe	186,0 ± 0,67	93,23 ± 1,0	190,13 ± 9,15	95,52 ± 4,58	+2,06

Der summierte Massenanteil der fünf Verbindungen beträgt gemäß Budapest-Analyse (93,23 ± 1,79) % an der Gesamtmasse der Betonmatrix. Der Massenanteil der fünf Verbindungen an der gesamten Betonmatrix bestimmt durch die Quantifizierung mit MEDINA beträgt (95,52 ± 4,58) % und überschätzt somit den absoluten Massenanteil um 2,06 %. Die mit MEDINA bestimmten Massenanteile zur Charakterisierung der Matrix summieren sich auf eine Gesamtmasse von (190,13 ± 16,00) kg auf. Würde man die Verbindungskonzentrationen der Budapest-Analyse unterstellen, wäre die Masse dieser fünf Verbindungen bezogen auf die Matrix um (4,13 ± 9,17) kg geringer. Relativ auf die Gesamtmasse des Fasses bezogen beträgt diese Abweichung nur +1,63 %. Berücksichtigt man die Unsicherheiten in beiden Analyseverfahren, so stimmen die Werte gut überein. Die absoluten Abweichungen zwischen den Analysen von Kleinstproben der Betonmatrix am Forschungsreaktor und der Analyse des 200-l-Fasses gefüllt mit der Betonmatrix liegen bei den quantifizierten Massenanteilen der einzelnen Verbindungen unterhalb von 2,12 %. Die durch MEDINA bestimmte Gesamtmasse der Verbindungen weist eine ca. 14-mal höhere Unsicherheit auf, als die Analyse am Forschungsreaktor in Budapest. Jedoch wurde am Forschungsreaktor eine Probe der Betonmatrix, die eine Masse von weniger als einem Gramm aufweist, 9 Stunden mit einem Neutronenfluss von $5 \cdot 10^7$ n $\cdot$ cm^{-2} $\cdot$ s^{-1} bestrahlt und analysiert. Die analysierte Probe bei MEDINA wog 252,72 kg, war also um den Faktor 2,5 $\cdot$ 10^5 schwerer, und wurde nur 20 Minuten mit einem Neutronenfluss von $3 \cdot 10^3$ n $\cdot$ cm^{-2} $\cdot$ s^{-1} bestrahlt. Zusammenfassend kann hieraus gefolgert werden, dass im Vergleich zu einem Forschungsreaktor, der eine überaus komplexe kerntechnische Anlage darstellt, mit der MEDINA-Testeinrichtung innerhalb einer Bestrahlungszeit von 20 Minuten eine unbekannte homogene Abfallmatrix mit einer hinreichenden Genauigkeit charakterisiert werden kann. Durch die in diesem Kapitel durchgeführte Analyse ist es möglich zu bestimmen, um welche Art der Abfallmatrix es sich innerhalb eines 200-l-Fasses handelt und wie diese Abfallmatrix stofflich zusammengesetzt ist.

11.3 Einflussfaktoren bei der Quantifizierung von räumlich konzentrierten Elementverteilungen

Eine mit Bezug auf die Abfallmatrix räumlich konzentrierte Elementverteilung ist bei einer neutroneninduzierten Aktivierung und winkelabhängigen Messung eines 200-l-Fasses anhand seiner Zählratenverteilung zu identifizieren. Die innerhalb des Messverfahrens aufgenommenen acht rotationsabhängigen Gamma-Spektren werden bzgl. dem interferenzfreien Zählratensignal $Z_{E_\gamma}(\alpha)$ einer Gamma-Linie mit der Energie E_γ in Abhängigkeit des Rotationswinkels α ausgewertet. Die gemessenen Zählraten der nachgewiesenen Gamma-Quanten werden durch eine modifizierte Gauß-Funktion mit fünf Parametern gemäß folgender Gleichung gefittet (Arbeitsschritt A7):

$$Z_{E_\gamma}(\alpha) = Z_{E_\gamma,\mathrm{hom}} + Z_{E_\gamma,0} \cdot a \cdot e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{|\alpha-\alpha_0|}{\sigma}\right)^c} \tag{11.7}$$

Die Eignung dieser Approximationsfunktion für die Korrelation zwischen dem Messsignal einer rotierenden Elementmasse innerhalb einer Verfüllmatrix und dem Rotationswinkel ist in Kapitel 10 dargelegt worden. Die Funktionsparameter der modifizierten Gauß-Funktion geben Auskunft über die radiale Position des Schwerpunkts einer räumlich konzentrierten Elementverteilung in der Abfallmatrix sowie über das Vorhandensein einer gleichzeitigen homogenen Elementverteilung. Der Funktionsparameter $Z_{E_\gamma,\mathrm{hom}}$ ist eine winkelunabhängige Erhöhung der modifizierten Gauß-Verteilung um eine Zählrate, die gleich dem Funktionsparameter ist. Diese Zählrate wird durch eine homogene Elementverteilung in der Abfallmatrix verursacht. Die Funktionsparameter $Z_{E_\gamma,\mathrm{hom}} + Z_{E_\gamma,0}$ ergeben die maximale Zählrate der modifizierten Gauß-Verteilung im Schwerpunkt der winkelabhängigen Verteilungsfunktion. Der Schwerpunkt der modifizierten Gauß-Funktion, angegeben durch den Funktionsparameter α_0 in Grad, gibt die mittlere Winkelposition einer räumlich konzentrierten Elementverteilung an. Die Funktionsparameter c und σ beschreiben die Streuung der modifizierten Gauß-Verteilung. Die Streuung einer rotationsabhängigen Zählratenverteilung resultiert aus der Überlagerung von physikalischen Einflussfaktoren auf die Photopeak-Effizienz der aus der räumlich konzentrierten Elementverteilung emittierten Photonen. Folgende Einflussfaktoren auf eine Zählratenverteilung sind zu berücksichtigen:

- die Rotation einer räumlich konzentrierten Elementmasse im Effizienzfeld des Detektors,
- die Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmung einer räumlich konzentrierten Elementmasse,
- die Gamma-Abschwächung der aus der räumlich konzentrierten Elementmasse emittierten Gamma-Quanten in der Abfallmatrix sowie in der Stahlwandung des Fasses und
- die Inhomogenität im Neutronenfluss innerhalb der Abfallmatrix.

Da der Detektor das gesamte 200-l-Fass erfasst, ist die Bestimmung der axialen Position einer konzentrierten Elementmasse nicht möglich. Dies impliziert eine systematische Unsicherheit, die im Quantifizierungsverfahren berücksichtigt wird. Die gesamte Messunsicherheit ergibt sich aus der Berücksichtigung der Unsicherheiten der systematischen und statistischen Unsicherheiten. Der Einfluss der oben genannten winkelabhängigen Faktoren auf eine Zählratenverteilung wird nachfolgend untersucht. Der Fokus der Analyse liegt darauf, herauszufinden, inwiefern die einzelnen Einflussfaktoren die Streuung der winkelabhängigen Zählratenverteilung prägen. Werden alle Einflussfaktoren berücksichtigt, kann anhand der Streuung einer Zählratenverteilung der mittlere Radialabstand einer räumlich konzentrierten Elementverteilung von der Symmetrieachse des Fasses bestimmt werden. Da das Messverfahren keine Information über die Ausdehnung einer mit Bezug auf die Abfallmatrix räumlich konzentrierten Elementmasse gibt, wird bei der Analyse der Implikation der Rotation einer räumlich konzentrierten Elementverteilung im Effizienzfeld des Detektors diese als Punktquelle betrachtet. Dieser Ansatz wurde durch die Inhomogenitätsstudie mit der Cadmiumplatte in Kapitel 10 validiert. Die Berücksichtigung der räumlichen Ausdehnung einer konzentrierten Elementverteilung in der Fassmatrix wird im Quantifizierungsverfahren (siehe Unterkapitel 11.4) über Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmungsfaktoren konservativ abdeckend berücksichtigt.

11.3.1 Rotation einer räumlich konzentrierten Elementverteilung

Durch die Rotation einer räumlich konzentrierten Elementverteilung verändert sich der Abstand zwischen der Elementmasse und dem Detektor sowie damit einhergehend die Photopeak-Effizienz für die Detektion der aus der Elementverteilung emittierten Gamma-Quanten. Grundsätzlich ist in dem hier vorliegenden Fall der Rotation einer räumlich konzentrierten Elementverteilung in einem 200-l-Fass der Radialabstand der konzentrierten Elementmasse kleiner als der Abstand zwischen Rotationsachse und Detektor. In Abb. 11.3 sind die für eine Rotation einer Elementmasse relevanten Abstände schematisch dargestellt. Es werden zwei verschiedene Radialabstände r_1 und r_2 von konzentrierten Elementmassen in einem 200-l-Fass eingezeichnet. Der Abstand L zwischen dem Fassmittelpunkt und der Detektorfrontfläche ist eine feste Größe der MEDINA-Testeinrichtung und beträgt 105 cm. Der Radius R eines 200-l-Fass beträgt meist 28 cm. Der Rotationswinkel des Fasses α wird für die analytische Herleitung so gewählt, dass der Schwerpunkt einer räumlich konzentrierten Elementmasse bei $\alpha = 0\,°$ dem Detektor zugewandt ist.

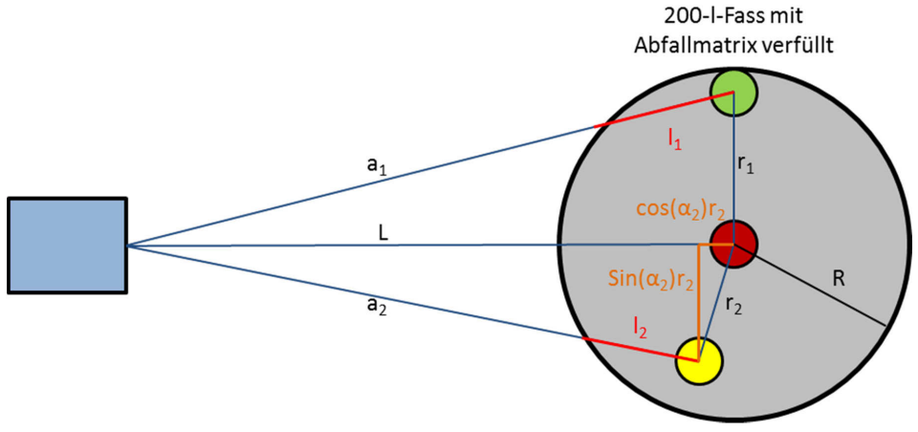


Abb. 11.3: *Schematische Darstellung zur Rotation einer räumlich konzentrierten Elementverteilung im MEDINA-Messverfahren.*

Durch die Rotation einer räumlich konzentrierten Elementmasse verändert sich der Abstand a (in Abb. 11.3 a_1 und a_2) zwischen dem Schwerpunkt der räumlich konzentrierten Elementmasse und der Frontfläche des Detektors wie folgt:

$$a(\alpha,r)=\sqrt{\left(L-\cos\alpha\cdot r\right)^2+\left(\sin\alpha\cdot r\right)^2} \tag{11.8}$$

Die Variation des Abstands $a(\alpha,r)$ bei der Rotation verursacht eine Veränderung der Photopeak-Effizienz, welche quadratisch mit Erhöhung des Abstands zwischen Detektor und räumlich konzentrierter Elementverteilung abnimmt. Die gemessene Zählrate $Z_{E_\gamma}(\alpha,r)$ einer rotierenden Punktquelle unterliegt in Abhängigkeit des Radialabstands und des Rotationswinkels unter Vernachlässigung der Gamma-Abschwächung durch die Fassmatrix und den Fasskörper der folgenden Funktion:

$$Z_{E_\gamma}(\alpha,r)=Z_0(r)\cdot\frac{\left(A-r\right)^2}{\left(A-\cos\alpha\cdot r\right)^2+\left(\sin\alpha\cdot r\right)^2} \tag{11.9}$$

Hierbei ist $Z_0(r)$ die gemessene Zählrate der räumlich konzentrierten Elementmasse bei $\alpha=0\,°$. In Abb. 11.6 ist der relative Effekt einer rotierenden Elementmasse auf die Photopeak-Effizienz mit abnehmendem Radialabstand r dargestellt. Als Referenzzählrate $Z_0=1$ wurde in der Abbildung $R=28\,cm$; $L=105\,cm$ und $\alpha=0\,°$ gewählt. Die Zählratenverteilungen werden mit modifizierten Gauß-Funktionen approximiert.

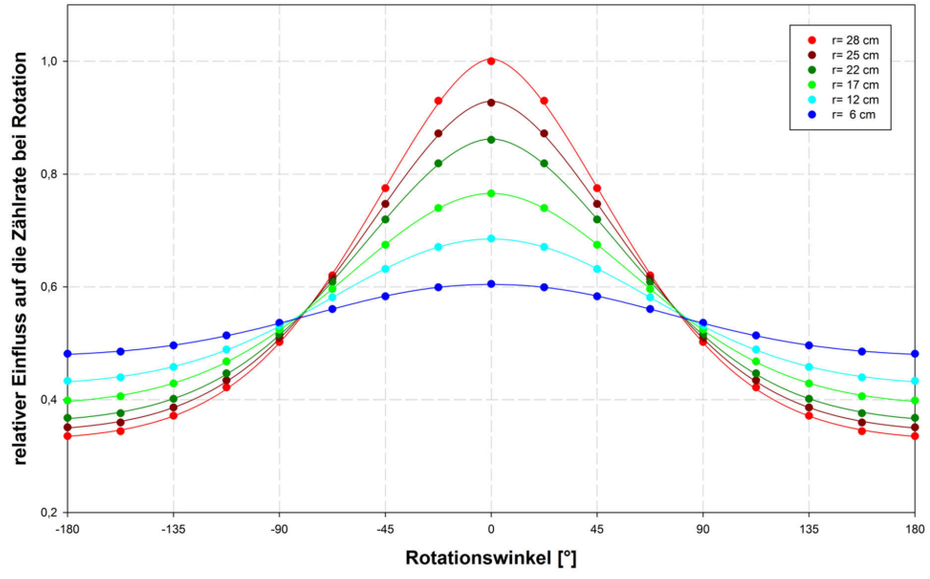


Abb. 11.4: *Relativer Einfluss des Radialabstands einer rotierenden, mit Bezug auf die Abfallmatrix räumlich konzentrierten Elementmasse auf die winkelabhängige Zählrate. Die Gamma-Abschwächung durch die Abfallmatrix und die Stahlmantelhülle ist nicht berücksichtigt.*

Der winkelabhängige Einfluss auf die Photopeak-Effizienz steigt mit zunehmendem Radialabstand. Eine räumlich konzentrierte Elementverteilung, deren Schwerpunkt sich im Fasszentrum befindet, verursacht keine winkelabhängige Zählratenverteilung. Bei einem Radialabstand von 28 cm würde ohne abschwächende Abfallmatrix das Zählratensignal bei einer Rotation minimal um 33,5 % im Vergleich zu einer Elementmasse bei $\alpha = 0\,°$ abfallen. Mit zunehmendem Radialabstand wird die Streuung der Zählratenverteilungen geringer.

Die winkelabhängige Zählratenverteilung, die alleinig den physikalischen Effekt der Rotation einer räumlich konzentrierten Elementmasse innerhalb eines 200-l-Fasses ohne abschirmende Strukturen berücksichtig, wurde analytisch hergeleitet und kann durch eine modifizierte Gauß-Funktion gefittet werden. Vernachlässigt wird hierbei der Effekt des Raumwinkels zwischen denen aus der Elementakkumulation emittierten Gamma-Quanten und dem Detektor. Je größer der Winkel zwischen Symmetrieachse des Detektors und einfallendem Gamma-Quant ist, desto niedriger ist die Photopeak-Effizienz. Der Einfluss des Raumwinkels zwischen den aus der Elementverteilung emittierten Gamma-Quanten und dem Detektor kann mit den bis dato durchgeführten Experimenten nicht quantifiziert werden. Jedoch sind bei der MEDINA-Testeinrichtung maximale Raumwinkel von 23,2° möglich. Bei Raumwinkeln unter 23,2° wird davon ausgegangen, dass Detektorraumwinkeleffekte beim Nachweis von Gamma-Strahlung vernachlässigbar sind. Dies muss jedoch durch eine Raumwinkelstudie zum Nachweis von Gamma-Quanten mit dem verwendeten Detektor zukünftig noch belegt werden.

Der Einfluss auf die Zählratenverteilung bei Rotation einer räumlich konzentrierten Elementmasse wurde nur auf der mittleren Fassebene analysiert. Die Axialposition einer Elementakkumulation kann durch die integrale Fassmessung nicht bestimmt werden. Dies impliziert eine Unsicherheit beim Verfahren zur Elementquantifizierung. Die maximale Unsicherheit tritt auf, wenn sich die räumliche konzentrierte Elementmasse am Fassboden oder am Fassdeckel befindet und kann unter Vernachlässigung einer Abschwächung der Gamma-Strahlung durch die Fassmatrix und den Fasskörper wie folgt quantifiziert werden:

$$u_r\left(H,N,L,r\right)=\frac{\left(N-H/2\right)^2}{\left(N-H/2\right)^2+\left(L-r\right)^2} \tag{11.10}$$

Die Gl. 11.10 definiert die absolute Unsicherheit im Quantifizierungsverfahren für eine räumlich konzentrierte Elementmasse ohne abschwächende Strukturen. Die Größe H ist die Fasshöhe. Standardmäßig beträgt die Fasshöhe eines 200-l-Fasses ca. 86 cm. Die Axialposition einer räumlich konzentrierten Elementmasse wird als N bezeichnet. Am Fassboden gilt $N=0$. Bei einer Axialposition von 86 cm und einem Radialabstand von 28 cm wird eine Abweichung von 23,8 % bestimmt. Befindet sich eine räumlich konzentrierte Elementverteilung mit ihrem Schwerpunkt bei einer Höhe von 76 cm und einem Radialabstand von 10 cm, wird beispielsweise eine Abweichung von nur 17 % bestimmt. In Abb. 11.6, links, wird die systematische Unsicherheit in Abhängigkeit von Radialabstand und Axialposition in einem Viertel eines 200-l-Fasses gemäß Gl. 11.10 dargestellt. Durch den bei MEDINA gewählten Abstand zwischen Fass und Detektor sind die Unsicherheiten, die aus der integralen Fassmessung und der Unkenntnis über die Axialposition einer räumlich konzentrierten Elementmasse resultieren, verhältnismäßig gering. Eine Erhöhung des Abstands L würde zu einer weiteren Reduzierung der Unsicherheit begründet aus der Axialposition resultieren. Nachteilig bei einer Erhöhung des Abstands L wäre, dass die Photopeak-Effizienz zum Nachweis von aus der Abfallmatrix und dem Fasskörper emittierten Gamma-Quanten sinkt.

11.3.2 Gamma-Abschwächung in der Fassmatrix sowie in der Stahlwandung des Fasses

Durch Rotation einer räumlich konzentrierten Elementverteilung verändert sich in Abhängigkeit vom Rotationswinkel α und vom Radialabstand r die Strecke, die ein aus der räumlich konzentrierten Elementverteilung emittiertes Gamma-Quant durch die absorbierende Abfallmatrix l_M und Stahlmantelhülle des Fasses l_W auf dem Weg zum Detektor zurücklegt. Für die Zählrate in Abhängigkeit des Rotationswinkels und des Radialabstands unter Berücksichtigung der Abschirmung in der Abfallmatrix sowie der Stahlwandung des Fasses gilt /11-3/:

$$Z_{E_\gamma}(\alpha,r) = \varepsilon_0 \cdot \frac{m_k}{M} \cdot N_A \cdot \sum_{\alpha,l_{n,i}} \left(\phi_{lok,i} \cdot \sigma_{E_\gamma,i} \right) \cdot \sum_{\alpha,l,l_w} \left(\frac{L}{a} \right)^2 \cdot e^{-\left(\mu_M / \rho_M \cdot \rho_M \cdot l(\alpha) \right)} \cdot e^{-\left(\mu_W / \rho_W \cdot \rho_W \cdot l_W(\alpha) \right)} \quad (11.11)$$

In Abb. 11.5 ist die Photopeak-Effizienz einer rotierenden Elementmasse unter Berücksichtigung der Gamma-Abschwächung einer Abfallmatrix und einem variablen Radialabstand r dargestellt, wobei der lokale Neutronenfluss $\phi_{lok,i}$ hierbei vereinfacht zunächst als konstant angenommen wird. Als Referenzzählrate $Z_0 = 1$ wurde in der Abbildung $R = 28\,cm$; $L = 105\,cm$ und $\alpha = 0°$ gewählt.

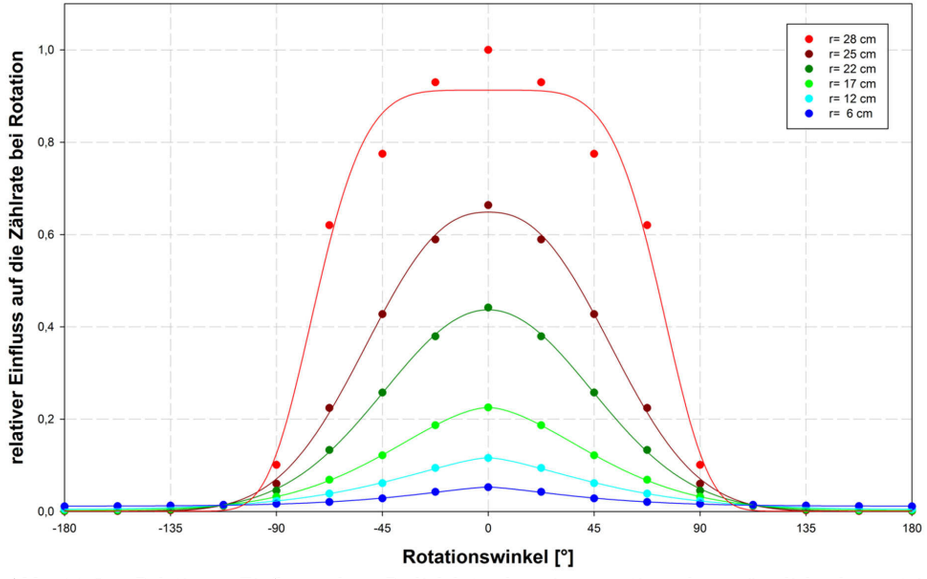


Abb. 11.5: *Relativer Einfluss des Radialabstands einer rotierenden räumlich konzentrierten Elementmasse auf die winkelabhängigen Zählraten in einer abschirmenden Betonmatrix,* wobei der lokale Neutronenfluss hierbei vereinfacht zunächst als konstant angenommen wird. *Der Massenschwächungskoeffizienten der Betonmatrix beträgt 0,109 cm²/g und die Dichte 1,02 g/cm³.*

Tab. 11.4: Funktionsparameter der modifizierten Gauß-Funktionen als Approximationsfunktionen der analytisch hergeleiteten winkelabhängigen Zählraten zum Einfluss einer rotierenden konzentrierten Elementmasse in einer Betonmatrix. Der Massenschwächungskoeffizient der Betonmatrix beträgt 0,109 cm²/g und die Dichte 1,02 g/cm³.

Radialabstand R [cm]	$Z_{E_\gamma,0}$ [c/s]	α_0 [°]	$\Delta\alpha_{1/2}$ [°]	R^2
28	0,912	0	73,4	0,9947
25	0,650	0	55,6	0,9985
22	0,437	0	51,2	0,9998
17	0,224	0	48,2	1,0000
12	0,112	0	46,9	0,9998
6	0,042	0	38,7	0,9995

Die Funktionsparameter der in Abb. 11.7 dargestellten modifizierten Gauß-Funktionen sind in Tab. 11.4 aufgeführt. Im Gegensatz zu der analytisch hergeleiteten Zählratenverteilung ohne Berücksichtigung der Gamma-Abschwächung durch die Abfallmatrix und die Fasswandung, wo der Funktionsverlauf mit zunehmendem Radialabstand immer spitzer wurde und die Streuung somit geringer, zeichnet sich unter Berücksichtigung der Gamma-Abschwächung bei konstantem thermischem Neutronenfluss in der Matrix ein entgegengesetzter Verlauf ab. Mit zunehmendem Radialabstand steigen die Streuung und somit die Streuparameter der modifizierten Gauß-Funktionen (σ und c) sowie die berechnete Halbe-Auflösung der Zählratenverteilung an. Da dies entgegensetzt der Kausalität ohne Gamma-Abschwächung ist, folgt daraus, dass mit zunehmender Gamma-Abschwächung durch die Abfallmatrix die Streuung der winkelabhängigen Zählratenverteilung zunimmt. Die Abschwächung des Stahlmantels hat nur einen geringen Effekt auf die Streuung der winkelabhängigen Zählraten, da die Abschwächungslänge der Gamma-Quanten durch die ca. 1,5 mm starke Fasswandung in Abhängigkeit des Rotationswinkels wenig variiert. Bei Stahlwerkstoffen existieren nur unwesentliche Unterschiede im materialspezifischen Massenschwächungskoeffizienten und der Dichte, so dass der Einfluss auf das analytische Modell vernachlässigbar ist. Der Effekt der Abschwächung der Gamma-Strahlung innerhalb der Abfallmatrix, definiert durch den Massenschwächungskoeffizient der Abfallmatrix und die Matrixdichte, ist signifikant für die Streuung der rotationsabhängigen Zählratenverteilung.

Die Höhenposition einer räumlich konzentrierten Elementmasse kann durch die integrale Fassmessung nicht erkannt werden. Dies impliziert bei der Lokalisierung einer räumlich konzentrierten Elementverteilung eine Unsicherheit auf die detektierten Zählraten. Die maximale Abweichung tritt auf, wenn sich eine räumlich konzentrierte Elementverteilung am Fassboden oder am Fassdeckel befindet und kann unter Berücksichtigung der Gamma-Abschwächung wie folgt quantifiziert werden:

$$u_r(H,N,L,r)=\sqrt{\left(\frac{\left(\left|N-H/2\right|\right)^2}{\left(\left|N-H/2\right|\right)^2+(L-r)^2}\right)^2+\left(e^{-\left(\mu_M/\rho_M\cdot\rho_M\cdot(R-r)\cdot\left(\frac{\sqrt{(L-r)^2+\left(N-H/2\right)}}{L-r}-1\right)\right)}-1\right)^2} \quad (11.12)$$

Die Gl. 11.12 definiert die absolute systematische Unsicherheit der Zählrate bei Rotation einer Elementverteilung inkl. dem Effekt der Abschwächung durch eine Abfallmatrix. Bei einer Fasshöhe H von 86 cm, einer Axialposition von N gleich 86 cm und einem Radialabstand von $r = 1\,cm$ folgt eine systematische Unsicherheit alleinig durch den Effekt des Abstand einer rotierenden räumlich konzentrierten Elementverteilung von 14,6 %. Hinzu kommt eine Unsicherheit durch die Gamma-Abschwächung einer unterstellten Betonmatrix von 21,8 %. Hieraus ergibt sich eine systematische Unsicherheit durch beide Effekte von 26,3 %.

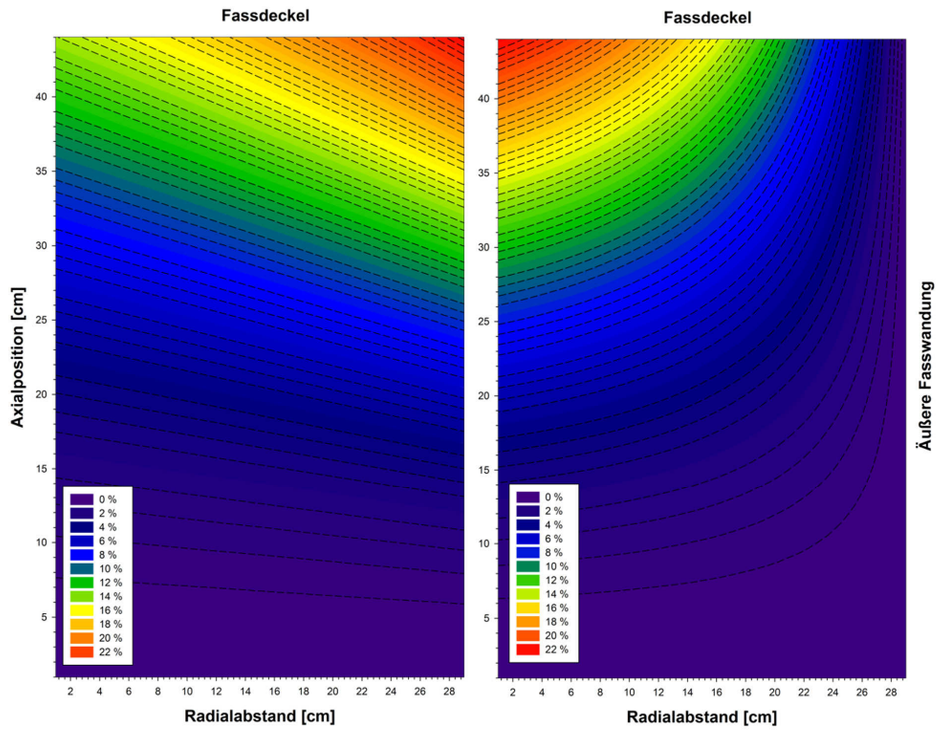


Abb. 11.6: *Systematische Unsicherheiten bei der Messung einer rotierenden räumlich konzentrierten Elementmasse.* ***Link:*** *Unsicherheit impliziert durch integrale Fassmessung, wobei die Gamma-Abschwächung durch eine Abfallmatrix und die Stahlmantelhülle nicht berücksichtigt ist.* ***Rechts:*** *Unsicherheit durch die Gamma-Abschwächung durch eine Abfallmatrix aus Beton. Der Massenschwächungskoeffizient der Betonmatrix beträgt 0,109 cm^2/g und die Dichte 1,02 g/cm^3. Der Nullpunkt der Axialposition und des Radialabstands befindet sich im Fassmittelpunkt.*

Die systematischen Unsicherheiten sind abhängig von der Position einer räumlich konzentrierten Elementmasse innerhalb der Abfallmatrix. In Abb. 11.6 ist die Ortsabhängigkeit der systematischen Unsicherheiten dargestellt. Vorteilhafterweise befinden sich die Maxima der systematischen Unsicherheiten der jeweiligen Effekte nicht an der gleichen Position. Über das gesamte Fassvolumen gemittelt beträgt die systematische Unsicherheit durch die Rotation einer räumlich konzentrierten Elementmasse nur 6,8 % und die systematische Unsicherheit durch die Gamma-Abschwächung durch die unterstellte Betonmatrix sogar nur 4,9 %.

11.3.3 Inhomogenität des Neutronenflusses

Die Bestrahlungsbedingungen in der MEDINA-Testeinrichtung führen in Abhängigkeit der im Fass befindlichen Abfallmatrix und der räumlich konzentrierten Elementverteilungen zu einem inhomogenen Neutronenfluss innerhalb der Abfallmatrix. Die Inhomogenität im Neutronenfluss resultiert daraus, dass die Stahlummantelung sowie die Fassmatrix die aus dem Neutronengenerator emittierten schnellen Neutronen sowie die aus den Graphitwandungen reflektierten Neutronen moderieren, reflektieren und absorbieren. Eine analytische Abbildung dieser komplexen Streuung- und Diffusionsprozesse ist nicht möglich. Zur Analyse des Neutronenflusses innerhalb eines 200-l-RRW-Fasses, gefüllt mit der in Unterkapitel 6.2 spezifizierten Betonmatrix wurde eine neutronenphysikalische probabilistische Simulation der MEDINA-Testeinrichtung mittels MCNP5 durchgeführt. Die Betonmatrix wurde wie die für die Inhomogenitätsstudie zur Verfügung stehende Matrix gemäß der Elementzusammensetzung in Tab. 6.2 simuliert. Anstatt einzelner zylindrischer Betonformkörper, wie sie in der Inhomogenitätsstudie verwendet wurden, wurde eine homogene Betonmatrix mit einer Dichte von 1,02 g/cm^3 unterstellt. Diese mittlere Dichte stellt sich bei der mittels Betonformkörpern modellierten Betonmatrix ein. In Abb. 11.7 ist als Ergebnis der Simulation die thermische Neutronenfluenz in der mittleren Fassebene zu sehen. Bezogen auf die Abbildung befindet sich oberhalb des Fassmittelpunkts die Neutronenquelle mit einem Abstand von 55 cm zum Fassmittelpunkt. Die Neutronenquelle ist somit minimal 17 cm von der Fasswandung entfernt. Rechts vom Fass befindet sich der Detektor in einem Abstand von 105 cm zum Fassmittelpunkt.

Die höchste simulierte thermische Neutronenfluenz befindet sich nicht an der Fassmantelfläche und somit näher an der Neutronenquelle sondern ca. 9 cm versetzt im Fassinneren sowie 2 cm nach links verschoben. Zu erklären ist dies durch die Moderation der Betonmatrix und die Inhomogenität der Reflexion der Neutronen aus den Wandungen der Bestrahlungskammer. Da die Wandung der Bestrahlungskammer in Bezug zu Abb. 11.8 rechts vom Fass weiter entfernt ist, ist hier die Reflexion von Neutronen in das Fass hinein geringer als auf der linken Seite, wo das Fass einen minimalen Abstand von nur 2 cm zur inneren Graphitwandung hat. Hieraus resultiert die Verschiebung der maximalen Neutronenfluenz im Fass von $7{,}0 \cdot 10^{-5}$ cm^{-2} hin zu der dem Detektor abgewandten Seite.

Im Stahlmantel des Fasses beträgt die höchste Neutronenfluenz $6{,}0 \cdot 10^{-5}$ cm^{-2} und befindet sich in dem der Neutronenquelle zugewandten Bereich. Von dem Maximum der Neutronenfluenz verlaufen die Isolinien in konzentrischen Ellipsen durch die Betonmatrix. Die Abweichung zwischen der niedrigsten und der maximalen Neutronenfluenz auf der mittleren Fassebene beträgt 64,3 %.

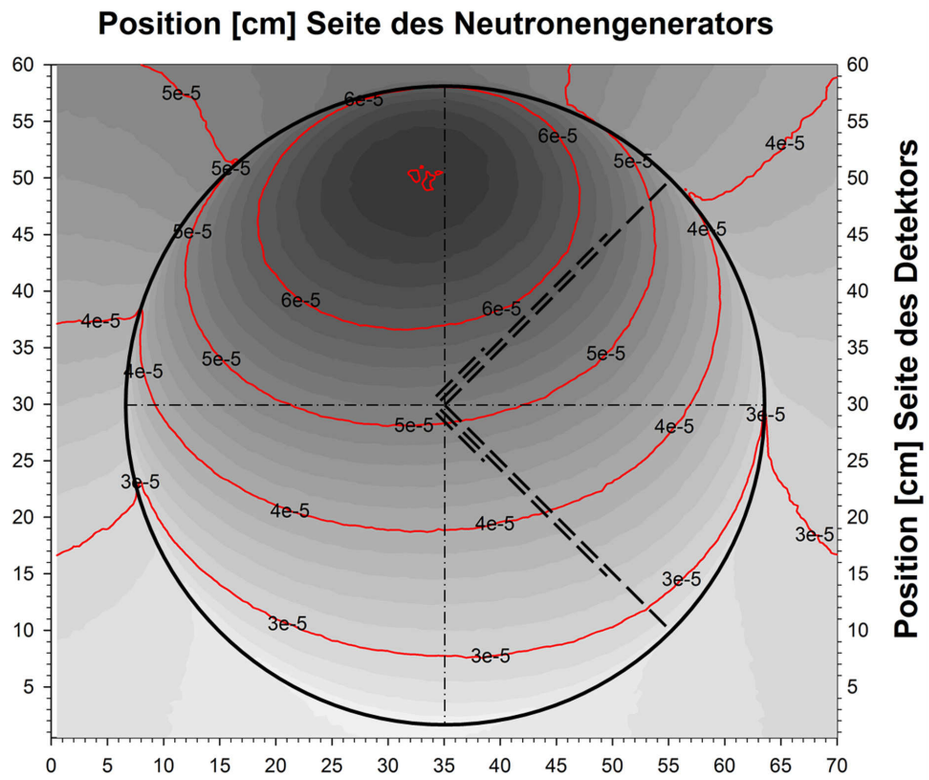


Abb.: 11.7: *Konturplot der thermischen Neutronenfluenz auf der mittleren Fassebene im Energiebereich von 10 meV-100 meV. Das Fass ist mit einer homogenen Betonmatrix (ρ=1,02 g/cm^3) gefüllt. Die drei gestrichelten Linien bei einem Rotationswinkel von 45° und 315° zeigen die drei Radialabstände 6 cm, 17 cm und 28 cm. Die Skala der Isolinien der Neutronenfluenz besitzt die Einheit cm^{-2} und ist auf das Quellteilchen normiert. Die MCNP5-Simulation wurde mit 1,5 · 10^9 Historien durchgeführt.*

In Abb. 11.8 ist die axiale Verteilung der Neutronenfluenz durch die Fassmitte dargestellt. Er ist ersichtlich, dass die Geraden zwischen den Brennpunkten der ellipsoid verlaufenen Isolinien nahezu parallel zu der Höhenachse des Fasses verlaufen. Zwischen der niedrigsten und der maximalen Neutronenfluenz in einem axialen Fassschnitt wurde ein relativer Unterschied von 85,7 % berechnet. Demnach würde die Neutronenfluenz vertikal über das Fass mehr variieren als innerhalb einer horizontalen Fassebene.

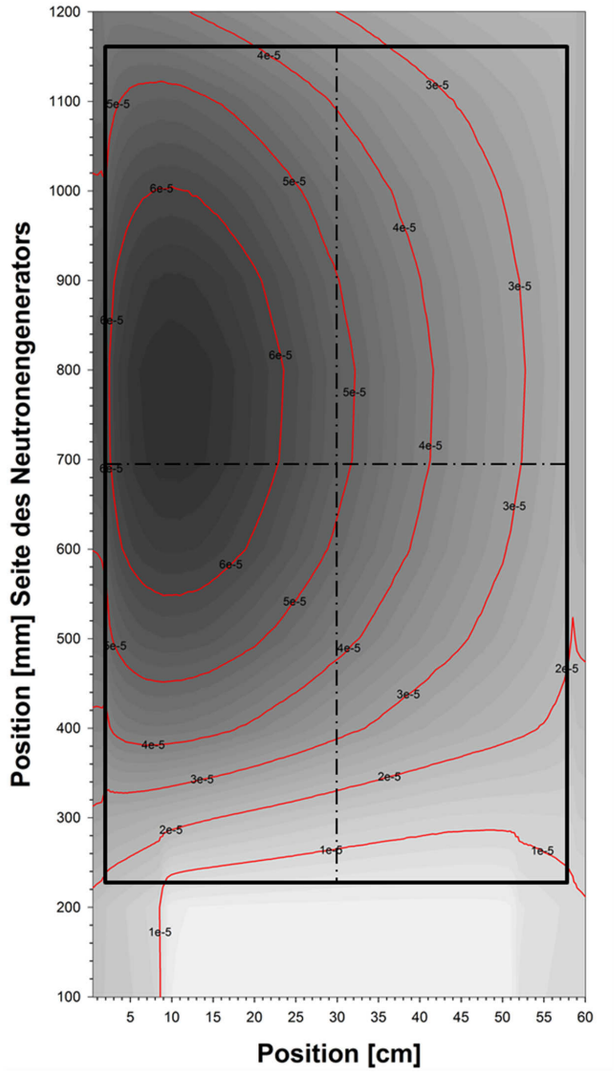


Abb.: 11.8: *Konturplot der thermischen Neutronenfluenz eines vertikalen Fassquerschnitts im Energiebereich von 10 meV-100 meV. Das Fass ist mit einer Betonmatrix (ρ=1,02 g/cm^3) gefüllt. Der Plot zeigt den Vertikalschnitt in der Mitte des Fasses. Die Skala der Isolinien der Neutronenfluenz besitzt die Einheit cm^{-2} und ist auf das Quellteilchen normiert. Die MCNP5-Simulation wurde mit 1,5 · 10^9 Historien durchgeführt.*

Die durch die Simulation bestimmten axialen Neutronengradienten weichen von den experimentellen Beobachtungen aus der Inhomogenitätsanalyse (siehe Kapitel 10) ab. Hier wurde experimentell festgestellt, dass der mittlere thermische und epithermische Neutronenfluss axial nur um 23,6 % und nicht um 85,7 % variiert. Die Simulation und die experimentell bestimmten Neutronenflüsse zeigen zwar die gleichen Verläufe, nämlich von der mittleren Fassebene ausgehend eine Erhöhung des mittleren thermischen Neutronenflusses in die oberen Fassebenen und eine Erniedrigung in den unteren Fassebenen, jedoch unterschätzt die MCNP-Simulation den thermischen Neutronenfluss in den unteren Ebenen.

Die Abweichungen zwischen den numerischen und experimentellen Werten der Neutronenflüsse resultieren daraus, dass in dem MCNP-Model der am Boden der Bestrahlungskammer nachträglich verbaute Graphit noch nicht implementiert wurde. Unterhalb des Fassdrehtellers wurde der Rundschalttisch bis zu den Graphitwandungen ringsherum mit Graphit variabler Höhe umgeben. Hierdurch wird die Neutronenleckage nach unten aus der Bestrahlungskammer vermieden und durch eine verbesserte Neutronenreflexion ein höherer Neutronenfluss im unteren Fassbereich erzielt. Der am Boden verbaute Graphit verbessert die Neutronenökonomie innerhalb der Bestrahlungskammer, was dadurch belegt wird, dass der mittels MCNP5 simulierte thermische Neutronenfluss im unteren Bereich des 200-l-Fasses geringer ist als die experimentell bestimmten Neutronenflüsse. Die experimentellen Aktivierungsanalysen belegen, dass der mittlere thermische Neutronenfluss ausgehend von der mittleren Fassebene über die Fasshöhe um +8,6 % und -15 % und somit über die Fasshöhe weniger variiert als innerhalb der mittleren horizontalen Fassebene.

Da das MCNP-Modell der MEDINA-Testeinrichtung bis auf den am Boden verbauten Graphit validiert ist, zeigt die Gegenüberstellung der simulierten und experimentellen Neutronenflüsse, dass der zusätzliche Graphitreflektor um den Fassdrehteller herum den axialen Gradienten im Neutronenfluss um ca. 62 % verbessert. Dies führt zu geringeren systematischen Unsicherheiten bedingt durch einen inhomogenen Neutronenfluss. Eine optimale homogene Neutronenreflexion der Wandungen der Bestrahlungskammer reduziert die systematische Unsicherheit, verursacht durch einen inhomogenen Neutronenfluss innerhalb der Abfallmatrix.

In Tab. 11.5 sind die simulierten mittleren thermischen Neutronenfluenzen durch den Fassdeckel, den Fassmantel und den Fassboden aufgeführt. Zur Bestimmung der entsprechenden integralen thermischen Neutronenflüsse durch die Fasskomponenten werden die simulierten Neutronenfluenzen mit dem experimentell ermittelten integralen thermischen Neutronenfluss im Fasskörper skaliert.

Tab. 11.5: *Simulierte thermische Neutronenfluenzen und anhand des experimentell ermittelten thermischen Neutronenflusses im gesamten Fasskörper skalierte Neutronenflüsse für die einzelnen Fasskomponenten. Die Neutronenflüsse gelten für einen einzigen schnellen Neutronenpuls.*

Fass-komponente	**simulierte integrale thermische Neutronenfluenz [cm^{-2}]**	**Fläche [cm^2]**	**Integraler thermischer Neutronenfluss [$n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$]**
Mantel	$5{,}11 \cdot 10^{-5}$	16353	3669 ± 20 %
Deckel	$4{,}47 \cdot 10^{-5}$	2463	3209 ± 20 %
Boden	$2{,}19 \cdot 10^{-5}$	2463	1572 ± 20 %
Gesamtes Fass	$4{,}70 \cdot 10^{-5}$	21279	3375 ± 20 %

Der experimentell ermittelte Wert für den integralen thermischen Neutronenfluss im Fasskörper wurde durch die Aktivierung des Stahlmantels bestimmt und beträgt (3375 ± 264) $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$. Der integrale epithermische Neutronenfluss beträgt 634 ± 49 $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$ (siehe Tab. 8.6). Dieser Neutronenfluss stellt

sich bei einer zyklischen Neutronen-Aktivierung mit einer Pulsdauer von 50 µs und einer Repetitionszeit von 1000 µs in der Sättigung ein. Die Sättigung wird ca. 7000 µs nach Bestrahlungsbeginn erreicht. Die MCNP5-Simulation berücksichtigt nicht die Akkumulation der thermischen Neutronen durch die gepulste zyklische Neutronen-Aktivierung. Der thermische Neutronenfluss unter Standardbestrahlungsbedingungen ist in der Sättigung um den Faktor 1,6 höher als nach einem einzelnen Neutronenpuls. Der Faktor der Neutronenakkumulation von 1,6 ergibt sich aus dem Verhältnis von Neutronenpulsperiode und der mittleren Lebensdauer der thermischen Neutronen in der Betonmatrix (siehe Kapitel 4). Der zur Skalierung der simulierten thermischen Neutronenflüsse verwandte integrale thermische Neutronenfluss im Fasskörper resultiert aus der Akkumulation der thermischen Neutronen bei den genannten Bestrahlungsbedingungen und berücksichtigt demnach den Faktor 1,6 bereits.

Zur Skalierung der simulierten Neutronenfluenz kann anstatt dem experimentell bestimmten integralen thermischen Neutronenfluss im Fasskörper auch die Neutronenemission des Neutronengenerators verwendet werden. Diese Quellstärke berücksichtigt jedoch nicht die individuellen Messbedingungen wie geminderte Neutronenemission durch Tritiumverbrauch oder Totzeiteffekte bei der Gamma-Detektion. Die Skalierung über den experimentell ermittelten integralen thermischen Neutronenfluss im Fasskörper ist hier zielführender. Mittels dieser Skalierung kann ebenfalls die Quellstärke des Neutronengenerators bei einem Experiment bestimmt und mit der eingestellten Quellstärke verglichen werden. Bei der Aktivierung der Stahlumhüllung des 200-l-RRW-Fasses inkl. Betonmatrix folgt durch Skalierung mit dem experimentell ermittelten integralen thermischen Neutronenfluss im Fasskörper eine Neutronenquellstärke von $7{,}18 \cdot 10^7$ n/s. Diese ist 8,6 % kleiner als die gemäß Spezifikation des Neutronengenerators eingestellte Quellstärke von $7{,}8 \cdot 10^7$ n/s. Der Emissionswert befindet sich jedoch in der angegebenen Toleranzbreite des Herstellers.

Neben dem Stahlfass als Neutronenmonitor gibt auch die in Kapitel 10 durchgeführte Inhomogenitätsstudie den mittleren thermischen Neutronenfluss auf der unteren, mittleren und oberen Fassebene wieder. In der Studie wurde eine Cadmiumplatte bei verschiedenen Radialabständen positioniert und für jeden Radialabstand das MEDINA-Messverfahren mit acht winkelabhängigen Messungen durchgeführt. Der innerhalb dieser Studie auf der mittleren Fassebene bestimmte mittlere thermische Neutronenfluss beträgt $(1692 \pm 389)\ \mathrm{n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}}$ und wurde zur Skalierung der simulierten Neutronenfluenzen auf der mittleren Fassebene verwendet. In Abb. 11.9 ist das Ergebnis dieser Skalierung und somit der simulierte thermische Neutronenfluss auf der mittleren Fassebene dargestellt.

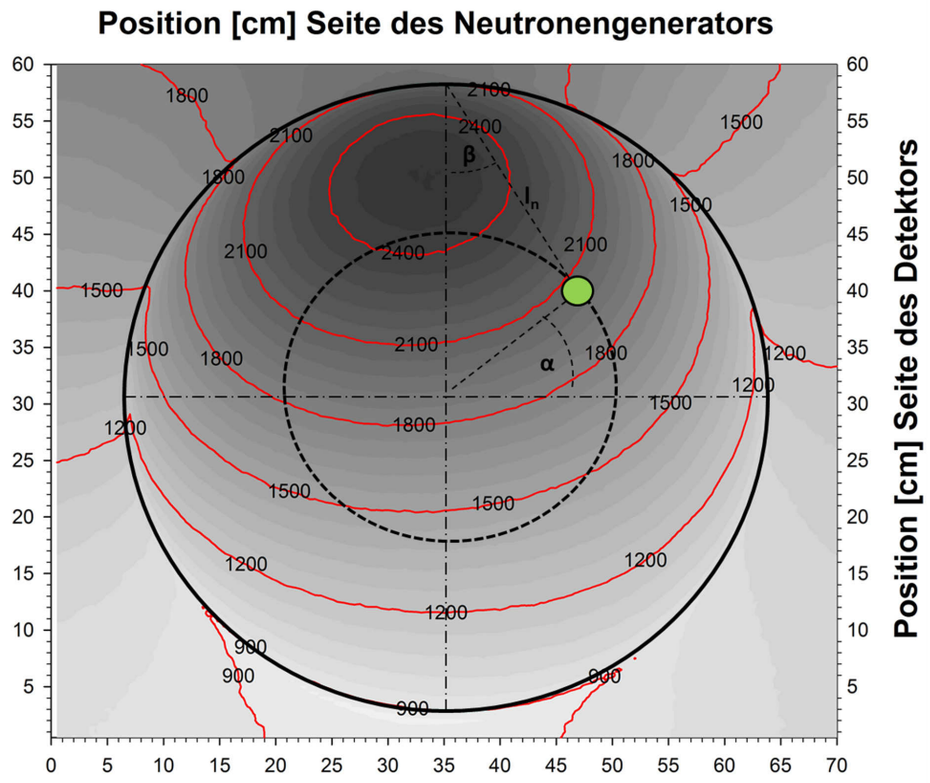


Abb.: 11.9: *Konturplot des thermischen Neutronenflusses durch den Fassquerschnitt. Das Fass ist mit einer homogenen Betonmatrix (ρ = 1,02 g/cm³) gefüllt. Der Plot zeigt den Horizontalschnitt in der Mitte des Fasses. Die Skala der Isolinien des Neutronenflusses besitzen die Einheit $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$. Der Neutronenfluss wurde aus den simulierten Neutronenfluenzen und einem experimentell bestimmten mittleren thermischen Neutronenfluss für die mittlere Fassebene von 1692 $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$ bestimmt. Der grüne Punkt verbildlicht eine rotierende räumlich konzentrierte Elementmasse.*

Aus der Inhomogenität im Neutronenfluss auf einer horizontalen Fassebene folgt, dass eine rotierende räumlich konzentrierte Elementverteilung in Abhängigkeit von ihrem Radialabstand und ihrem Rotationswinkel unterschiedlich stark aktiviert wird. Der lokale thermische Neutronenfluss ist von der Abfallmatrix sowie vom Abstand zur Neutronenquelle bzw. vom Abstand der Fasswandung mit dem höchsten Neutronenfluss abhängig. Von dieser Position an der Fasswandung variiert der Neutronenfluss über die Länge l_n. Der Abstand l_n ist die Strecke zwischen der Fassmantelfläche mit dem höchsten Neutronenfluss bis zum Schwerpunkt einer räumlich konzentrierten Elementmasse. In Abb. 11.10 werden die für eine Rotation zweier Elementakkumulationen bei den Radien r_1 und r_2 relevanten Größen für die Berechnung des thermischen Neutronenflusses dargestellt. Während die Längen l_1 und l_2 eine Abschwächung der aus der räumlich konzentrierten Elementmasse emittierten Gamma-Quanten

verursachen, impliziert die Länge l_n eine abschwächende Wirkung auf den Neutronenfluss, der eine Aktivierung induziert. Der Rotationswinkel des Fasses α wird so gewählt, dass bei $\alpha = 0°$ der Schwerpunkt der räumlich konzentrierten Elementmasse dem Detektor zugewandt ist.

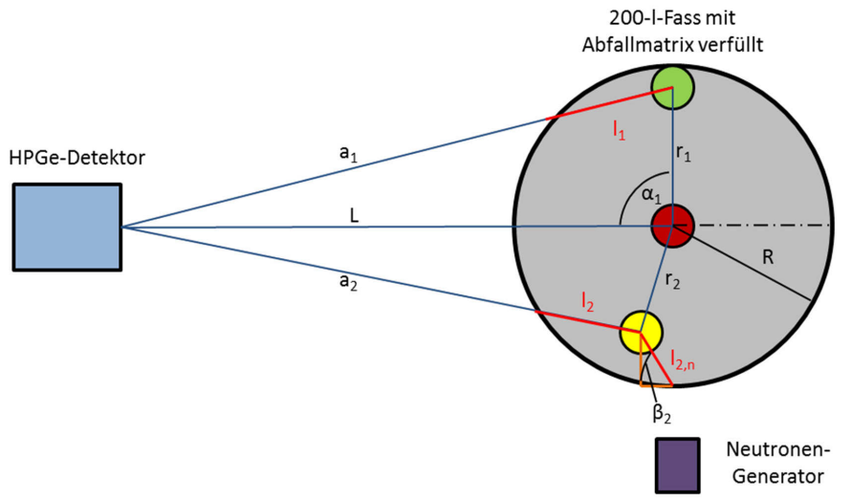


Abb. 11.10: *Schematische Darstellung zur Rotation einer mit Bezug auf die Abfallmatrix räumlich konzentrierten Elementmasse und Skizzierung der für die Neutronen relevanten Abschwächungslänge* $l_{n,2}$.

Durch Rotation einer räumlich konzentrierten Elementmasse verändert sich die Länge l_n zwischen dem Schwerpunkt der Elementmasse und der Mantelfläche mit dem höchsten Neutronenflusses $\phi_{th,W}$ wie folgt:

$$l_n(\alpha, r) = \sqrt{r(\alpha)^2 + R^2} \tag{11.13}$$

Neben der Abschirmlänge l_n ist der Winkel zwischen der Position an der Fasswandung mit dem höchsten Neutronenfluss und der räumlich konzentrierten Elementmasse relevant, da der Neutronenfluss zur Seite des Detektors bzw. zur Detektor abgewandten Seite schneller abfällt als entlang der Symmetrieachse zwischen Neutronengenerator und Fassmittelpunkt. Der Abweichungswinkel zwischen der Position an der Fasswandung mit dem höchsten Neutronenfluss $\phi_{th,W}$ und der Elementakkumulation auf der gleichen Fassebene wird als β bezeichnet (siehe Abb. 11.10). In Abhängigkeit des Rotationswinkels der Elementakkumulation α wird er wie folgt berechnet:

$$\beta(r, l_n) = \arccos\left(\frac{r^2}{l_n^2 + R^2 - 2 \cdot r \cdot l_n}\right) \tag{11.14}$$

Die Abschwächung des thermischen Neutronenflusses innerhalb einer Abfallmatrix wird zunächst durch eine Exponentialfunktion beschrieben:

$$\phi_{th}(l_n) = \phi_{th,W} \cdot e^{-\eta \cdot l_n} \tag{11.15}$$

Der Parameter η stellt einen für eine Abfallmatrix gemittelten totalen makroskopischen Wirkungsquerschnitt für die Absorption thermischer Neutronen, unter Berücksichtigung der Reflexion und Moderation der schnellen Neutronen innerhalb der Bestrahlungskammer und der Abfallmatrix, dar. Bei einer unbekannten Abfallmatrix kann der Parameter η durch die mittels thermischer Neutronen induzierte Aktivierung einer räumlich konzentrierten Elementmasse bestimmt werden. Hierfür werden bei zwei Elementpositionen, die die gleiche Photopeak-Effizienz aufweisen, die Zählraten bestimmt. Der Unterschied in den Zählraten ist durch die Schwächung des Neutronenflusses, beschrieben durch den Parameter η, innerhalb der Abfallmatrix begründet:

$$Z_{E_\gamma}(\alpha) = Z_{E_\gamma}(-\alpha) \cdot e^{-\eta \cdot \Delta l(\alpha,-\alpha)} \tag{11.16}$$

Die Länge $\Delta l(\alpha,-\alpha)$ ist die Wegstrecke zwischen den Positionen der räumlich konzentrierten Elementmasse, die die gleiche Photopeak-Effizienz aufweisen.

Bei der MEDINA-Testeinrichtung und der Bestrahlung des Referenzfasses mit einer Betonmatrix beträgt $\eta = 0{,}00481\,cm^{-1}$. Der Wert ist aus den Neutronen-Aktivierungs-Analysen der Cadmiumplatte in der Betonmatrix mittels Gl. 11.16 bestimmt. Gemäß diesem exponentiellen Modell der Abschwächung des thermischen Neutronenflusses würde der thermische Neutronenfluss von der Position an der Fasswandung mit dem höchsten Neutronenfluss $(2100 \pm 418)\ n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$ innerhalb der Betonmatrix nach 56 cm auf minimal $(1604 \pm 319)\ n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$ abnehmen (siehe Abb. 11.11).

Wie die experimentellen Ergebnisse der Inhomogenitätsstudie und die MCNP-Studie zeigen, ist die Darstellung des lokalen thermischen Neutronenflusses alleinig durch die exponentielle Abschwächung nicht ausreichend. Im Vergleich zum simulierten Neutronenfluss gemäß Abb. 11.9 werden der Verlauf der Isolinien des Neutronenflusses und das räumliche Maximum im Fassinneren nicht abgebildet. Die exponentielle Abschwächung durch den Parameter η muss mit einer mathematischen Funktion so gekoppelt werden, dass die Inhomogenität im Neutronenfluss auf einer horizontalen Fassebene realistischer modelliert wird.

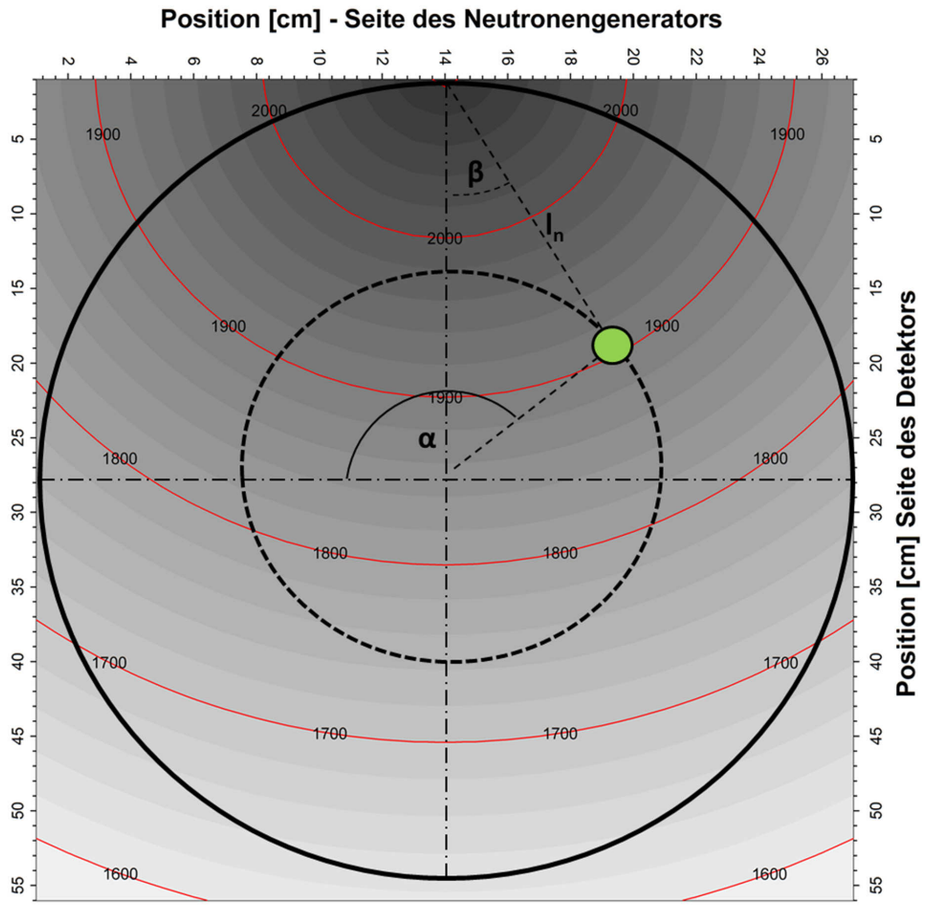


Abb.: 11.11: *Konturplot des horizontalen thermischen Neutronenflusses in der Fassmitte. Der Konturplot basiert nur auf dem gemittelten makroskopischen Wirkungsquerschnitt für thermische Neutronen und berücksichtigt noch keine Modellierung des Neutronenflusses. Die dargestellten Isolinien des Neutronenflusses besitzen die Einheit* $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$.

Der Neutronenfluss, der eine rotierende räumlich konzentrierte Elementmasse aktiviert, ist auf der dem Neutronengenerator zugewandten Seite stark winkelabhängig, wobei diese Winkelabhängigkeit mit zunehmendem Radialabstand zunimmt. Um den thermischen Neutronenfluss über eine horizontale Ebene abbilden zu können, muss die exponentielle Abschwächung der Neutronen mit einer Funktion gekoppelt werden, die die Minderung des Neutronenflusses in Abhängigkeit des Winkels β bzw. dem Rotationswinkel α berücksichtigt (siehe Abb. 11.10). Der Neutronenfluss, der eine rotierende räumlich konzentrierte Elementmasse auf der dem Neutronengenerator zugewandten Seite aktiviert, nimmt bis zu einem Rotationswinkel von 90° zu und danach wieder ab.

Die Winkelabhängigkeit des lokalen Neutronenflusses, der eine rotierende Elementakkumulation aktiviert, kann durch die folgende empirische Gleichung modelliert werden /11-2/:

$$\phi_{th}\left(l_n,\beta\right)=\overline{\phi_{th}}\cdot\frac{2R}{H}\cdot e^{-\eta\cdot l_n}\cdot\frac{1}{\left(\sin\beta+\cos\beta\right)^{3/2}} \tag{11.17}$$

Der integrale thermische Neutronenfluss im Fasskörper $\overline{\phi_{th}}$ muss als experimenteller Eingangsparameter individuell für jede Messung bestimmt werden. Für den thermischen Neutronenfluss im Fassmittelpunkt $\phi_{th,0}$ bei $l_n=28\,cm$ und $\beta=0°$ gilt:

$$\phi_{th,0}=\overline{\phi_{th}}\cdot\frac{2R}{H}\cdot e^{-\eta\cdot R/2} \tag{11.18}$$

Für den höchsten thermischen Neutronenfluss an der Fassmantelfläche $\phi_{th,W}$ bei $l_n=0\,cm$ und $\beta=0°$ gilt:

$$\phi_{th,W}=\overline{\phi_{th}}\cdot\frac{2R}{H} \tag{11.19}$$

Bei den experimentellen Randbedingungen $R=28\,cm$ und $H=86\,cm$ folgt, dass der Neutronenfluss durch den Fassmittelpunkt 60,9 % vom integralen thermischen Neutronenfluss im Fasskörper beträgt. In Abb. 11.13 ist der Konturplot aufgezeigt, der gemäß Gl. 11.17 den inhomogenen Neutronenflusses in der mittleren Fassebene mathematisch modelliert. Zur Skalierung des Neutronenfluss wurde ein integraler thermische Neutronenfluss durch die Stahlumhüllung des Fasses $\overline{\phi_{th}}$ von $(3743 \pm 301)\ n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$ verwendet. Hieraus resultiert ein Neutronenfluss im Fassmittelpunkt von $(1920 \pm 384)\ n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$.

Wie in der Inhomogenitätsstudie belegt und in Abb. 10.10 dargestellt, nimmt der Neutronenfluss nicht nur mit dem Winkel β ab, sondern ist auf der Symmetrieachse zwischen Neutronengenerator und Fassmittelpunkt erhöht. Dies wird durch das Modell mittels Gl. 11.17 gut wiedergegeben. Die Modellierung des Neutronenflusses wie in Abb. 11.12 dargestellt modelliert jedoch nicht den ellipsoiden Verlauf der Isolinien des Neutronenflusses ausgehend von einem räumlichen Maximum. Eine rotierende Quelle durchläuft so auf der dem Neutronengenerator zugewandten Seite eine größere Variation im Neutronenfluss als auf der dem Neutronengenerator abgewandten Seite.

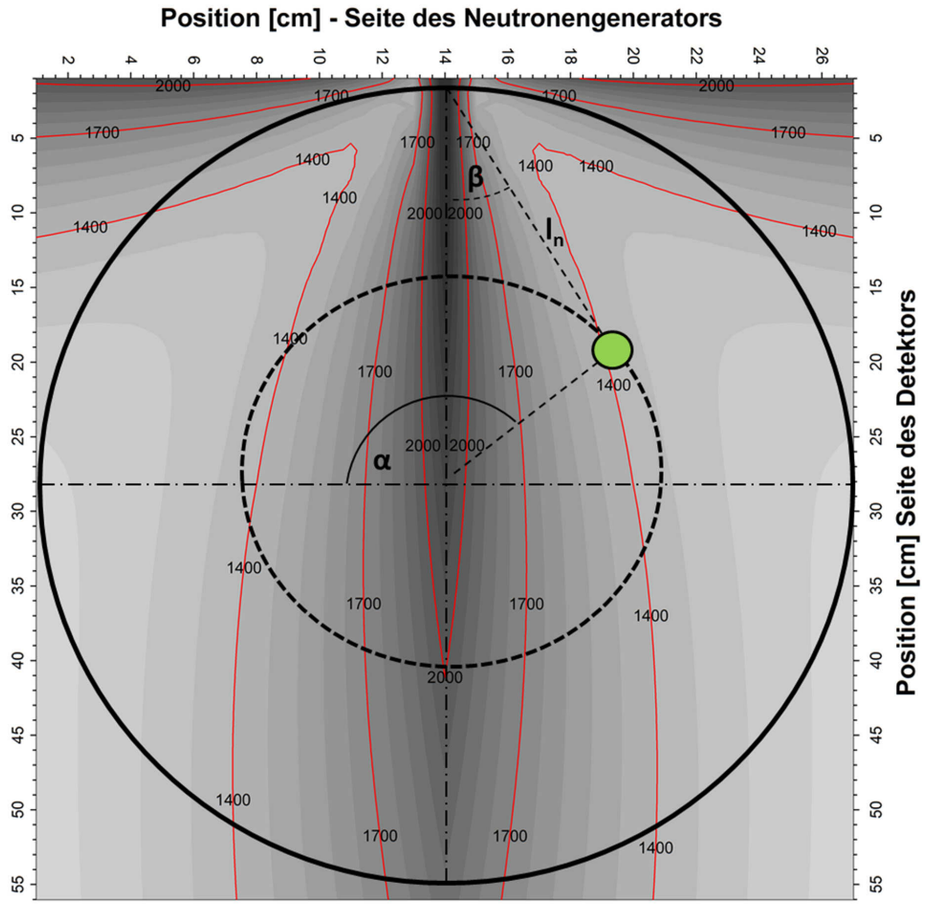


Abb.: 11.12: *Konturplot des horizontalen thermischen Neutronenflusses in der Fassmitte. Der Konturplot basiert nur auf dem gemittelten makroskopischen Wirkungsquerschnitt für thermische Neutronen und einer mathematische Modellierung der Inhomogenität des Neutronenflusses. Die Einheit der dargestellten Isolinien des Neutronenflusses ist* $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$.

Nachdem die Inhomogenität im thermischen Neutronenfluss in Abhängigkeit des Rotationswinkels α und des Radialabstands r modelliert wurde, kann der lokale Neutronenfluss auf der mittleren Fassebene bestimmt werden. In Tab. 11.6 werden experimentell bestimmte Neutronenflüsse (aus Kapitel 10) mit den modellierten verglichen.

Tab. 11.6: *Vergleich der experimentell ermittelten mit den mathematisch modellierten Neutronenflüssen auf der mittleren Fassebene (experimentell: exp; berechnet: ber.).*

	Radial-abstand	Rotations-winkel	exp. Neutronen-Fluss [cm^{-2}]	Unsicherheit exp. Neutronen-Fluss [cm^{-2}]	ber. Neutronen-Fluss [cm^{-2}]	Unsicherheit ber. Neutronen-Fluss [cm^{-2}]	ber./exp. Neutronen-Fluss	Unsicherheit ber./exp. Neutronen-Fluss
Mittlere Fassebene	r =28 cm	0	1310	204	1198	96	0,9145	0,1602
		45	933	150	1272	102	1,3633	0,2449
		90	1570	285	1861	118	1,1854	0,2279
		270	2057	380	2437	196	1,1847	0,2387
		315	1436	231	1472	118	1,0251	0,1842
	r = 17 cm	0	1049	210	1293	104	1,2326	0,2659
		45	995	183	1434	115	1,4412	0,2892
		90	2012	473	1963	158	0,9756	0,2424
		270	2347	458	2311	186	0,9847	0,2079
		315	1476	279	1336	107	0,9051	0,1858
	R = 6 cm	0	1395	281	1641	132	1,1763	0,2551
		45	1350	242	1754	141	1,2993	0,2553
		90	1495	422	2069	166	1,3839	0,4061
		135	2190	574	1754	141	0,8009	0,2196
		180	2222	963	1641	132	0,7385	0,3255
		225	1678	523	1736	139	1,0346	0,3329
		270	1626	320	2192	176	1,3481	0,2865
		315	1505	355	1736	140	1,1535	0,2875
Obere Fassebene	r =28 cm	0	1381	257	1198	96	0,8675	0,1758
		45	943	181	1272	102	1,3489	0,2806
		90	1748	290	1862	150	1,0652	0,1965
		270	2466	413	2437	196	0,9882	0,1836
		315	1401	224	1472	118	1,0507	0,1879
	r = 17 cm	0	1198	221	1293	104	1,0793	0,2172
		45	1502	278	1434	115	0,9547	0,1926
		90	2136	465	1963	157	0,919	0,2131
		270	2356	489	2312	186	0,9813	0,2184
		315	1544	305	1336	108	0,8653	0,1847
	R = 6 cm	0	1202	349	1641	132	1,3652	0,4113
		45	1152	270	1754	141	1,5226	0,3773
		90	1895	452	2069	166	1,0918	0,2748
		135	1770	675	1754	141	0,991	0,3862
		270	1998	522	2192	176	1,0971	0,2999
		315	1223	309	1736	140	1,4195	0,3765
Untere Fassebene	r =28 cm	0	1187	196	1198	96	1,0093	0,1852
		45	1684	178	1272	102	0,7553	0,1002
		90	1999	343	1862	149	0,9315	0,1764
		270	963	211	2437	196	2,5306	0,5907
		315	976	156	1472	118	1,5082	0,2697
	r = 17 cm	0	957	167	1293	103	1,3511	0,2592
		45	1080	192	1434	115	1,3278	0,259
		90	1851	427	1963	157	1,0605	0,2589
		225	2349	1194	1336	107	0,5688	0,2927
		270	1734	451	2311	185	1,3328	0,3627
		315	1069	197	1336	107	1,2498	0,2511
	R = 6 cm	0	964	280	1641	132	1,7023	0,513
		45	1092	308	1754	141	1,6062	0,4711
		270	1755	412	2192	176	1,249	0,3099
		315	1068	328	1736	139	1,6255	0,5159

Die mittlere Abweichung der berechneten zu den experimentell bestimmten Neutronenflüssen beträgt 17,5 %. Das Modell zur Bestimmung der ortsabhängigen Neutronenflüsse berücksichtigt nicht den reduzierten Neutronenfluss im unteren Teil des 200-l-Fasses bedingt durch reduzierte Neutronenreflexion am Boden der Bestrahlungskammer. Daher sind die Werte des Neutronenflusses durch das Modell besonders im unteren Fassbereich überschätzt.

Bei einem mittels einer Software automatisierten Verfahren ist die Hinterlegung der mit MCNP simulierten Neutronenfluenzen in einer Matrix und die Verwendung einer Feldfunktion, die zu jedem Punkt in der horizontalen Fassebene den entsprechenden lokalen Neutronenfluss berechnet, präziser als die Fortführung der mathematischen Modellierung des inhomogenen Neutronenflusses. Experimenteller Eingangsparameter in dieser Feldfunktion zur Skalierung der Neutronenfluenzen wäre der integrale thermische Neutronenfluss im Fasskörper. Beachtungsrelevant ist jedoch, dass diese auf MCNP-Simulationen basierende Feldfunktion von der Bestrahlungseinrichtung und der Abfallmatrix abhängig ist.

Die Höhenposition einer räumlich konzentrierten Elementmasse kann durch die integrale Fassmessung nicht erkannt werden. Die maximale Abweichung für die Detektion von Gamma-Quanten aufgrund der Inhomogenität des Neutronenflusses würde auftreten, wenn sich die Elementakkumulation am Fassboden befindet. Die über das gesamte Fass gemittelten systematischen Unsicherheiten durch die Rotation einer räumlich konzentrierten Elementmasse ohne Gamma-Abschwächung beträgt 6,8 %. Die mittlere systematische Unsicherheit durch die Gamma-Abschwächung ist bei der unterstellten Betonmatrix mit 4,9 % noch geringer. Die mittlere Unsicherheit auf die Bestimmung des lokalen Neutronenflusses auf der mittleren Fassebene $u_r\left(\phi_{th,lok}\right)$ beträgt 31,8 % und ist somit der einflussreichste Effekt auf die Unsicherheit im Quantifizierungsverfahren.

Die systematische Unsicherheit unter Berücksichtigung der Abschwächung der Gamma-Strahlung und des inhomogenen Neutronenflusses kann wie folgt quantifiziert werden:

$$u_r = \sqrt{\left(\frac{\left(\left|N-H/2\right|\right)^2}{\left(\left|N-H/2\right|\right)^2+\left(L-r\right)^2}\right)^2+\left(e^{\left(-\left(\mu_M/\rho_M\cdot\rho_M\cdot(R-r)\cdot\left(\frac{\sqrt{(L-r)^2+\left(N-H/2\right)}}{L-r}-1\right)\right)\right)}-1\right)^2+\left(u_r\left(\phi_{th,lok}\right)\right)^2} \quad (11.20)$$

Die betrachteten drei systematischen Unsicherheiten betragen über das gesamte Fass gemittelt 36,9 %. In Abb. 11.14 ist die Ortsabhängigkeit der Überlagerung der systematischen Unsicherheiten dargestellt.

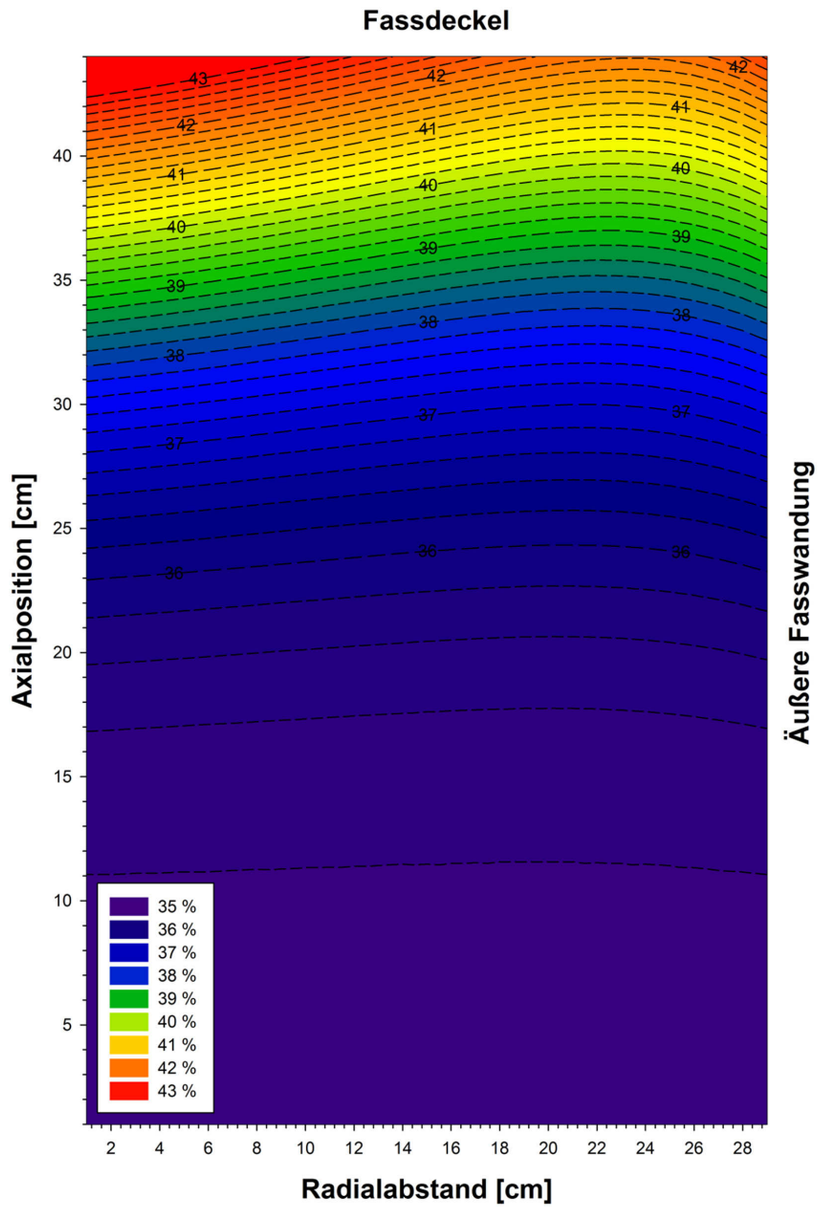


Abb. 11.14: *Systematische Unsicherheiten bei der Messung einer rotierenden, mit Bezug auf die Abfallmatrix räumlich konzentrierten Elementmasse. Der Massenschwächungskoeffizient der Betonmatrix beträgt 0,109 cm^2/g und die Dichte 1,02 g/cm^3. Der Nullpunkt der Axialposition und des Radialabstands befindet sich im Fassmittelpunkt.*

11.4 Quantifizierung einer Elementmasse bei räumlich konzentrierten Elementverteilungen

Eine mit Bezug auf die Abfallmatrix räumlich konzentrierte Elementverteilung ist bei einer neutroneninduzierten Aktivierung und winkelabhängigen Messung eines 200-l-Fasses anhand einer winkelabhängigen Zählratenverteilung zu identifizieren. Die im Kapitel 11.3 analysierten Einflussfaktoren prägen die Streuung der Zählratenverteilung und die systematischen Unsicherheiten des Quantifizierungsverfahrens.

Für den Fall einer räumlich konzentrierten Elementverteilung in einer Betonmatrix ist die Bestimmung des mittleren Radialabstands einer räumlich konzentrierten Elementverteilung r anhand der bestimmten Halben-Auflösung einer gemessenen Zählratenverteilung gemäß Gl. 10.3 möglich (Arbeitsschritt A8). Bei diesem Verfahren werden alle im vorigen Kapitel beschriebenen matrixspezifischen Einflussfaktoren berücksichtigt.

Nachdem der mittlere Radialabstand und die Winkelposition einer räumlich konzentrierten Elementverteilung im 200-l-Fass anhand der Streuung der Zählratenverteilung bestimmt wurde, wird der vom Rotationswinkel und Radialabstand abhängige lokale Neutronenfluss $\phi_{th}(\alpha, r)$ an der Position des Schwerpunkts der räumlich konzentrierten Elementverteilung durch Gl. 11.17 bestimmt. Hierfür ist zunächst die für die Abschwächung des Neutronenflusses relevante Länge l_n durch Gl. 11.13 zu errechnen. Nachfolgend wird im Fall der PGNAA mit thermischen und epithermischen Neutronen für die Quantifizierung der Elementmasse $m_{E,0}$ ohne Berücksichtigung der Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmung auf Basis von Gl. 4.21 folgende Gleichung verwendet:

$$m_{E,0} = \frac{Z_{E_\gamma} \cdot M_E}{N_A \cdot e^{-\left(\mu/\rho\right)_{Matrix} \cdot \rho_{Matrix} \cdot l} \cdot e^{-\left(\mu/\rho\right)_{Stahl} \cdot \rho_{Stahl} \cdot d_{Stahl}} \cdot \phi_{th}(\alpha, r) \cdot \left(\sigma_{E_\gamma} + \frac{\sigma_{E_\gamma,epi}}{5{,}32}\right) \cdot \varepsilon_{E_\gamma,0}} \tag{11.21}$$

Für die aus der räumlich konzentrierten Elementverteilung emittierten Gamma-Quanten sind die Abschwächungslängen innerhalb der Abfallmatrix l und innerhalb des Fasskörpers d_{Stahl} zu bestimmen. Die partiellen Wirkungsquerschnitte für thermischen und epithermischen Neutroneneinfang $\sigma_{E_\gamma,th}$ und $\sigma_{E_\gamma,epi}$ sind validierte kernphysikalische Größen. Die Photopeak-Effizienz $\varepsilon_{E_\gamma,0}$ ist die energieabhängige Photopeak-Effizienz für Gamma-Emissionen aus dem Mittelpunkt eines 200-l-Fasses (siehe Abb. 7.4).

Anhand der quantifizierten Elementmasse $m_{E,0}$ wird die Kantenlänge der Elementverteilung für den Fall errechnet, dass es sich bei der Elementverteilung um einen Würfel handelt. Aus Abb. 3.4, die die Neutronen-Selbstabschirmungsfaktoren für einfache geometrische Objekte vergleicht, ist ersichtlich, dass

die Annahme eines Würfels bzgl. der Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmung konservativ ist. Es gilt demnach:

$$m_{E,0} = \rho_E \cdot d^3 \tag{11.22}$$

Die Dichte des Elements ist ρ_E und die Kantenlänge des Würfels wird als d bezeichnet. Für die Kantenlänge der berechneten Elementmasse folgt:

$$d = \left(\frac{m_{E,0}}{\rho_E} \right)^{1/3} \tag{11.23}$$

Anschließend folgt die Quantifizierung der räumlich konzentrierten Elementmasse m_E unter Berücksichtigung der Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmung für den angenommen Würfel mit der Kantenlänge d:

$$m_E = \frac{m_{E,0} \cdot \left(\mu/\rho\right)_E \rho_E d}{\left(1 - e^{-\left(\mu/\rho\right)_E \cdot \rho_E \cdot d}\right)} \cdot d \cdot e^{-\left(\mu/\rho\right)_M \cdot \rho_M \cdot d} \cdot \frac{\sigma_{E_\gamma,th} + \frac{\sigma_{E_\gamma,epi}}{5,32}}{\frac{\sigma_{E_\gamma,th}}{\Sigma_{th}}\left(1 - e^{-\Sigma_{th} \cdot d}\right) + \frac{\sigma_{E_\gamma,epi}}{5,32 \cdot \Sigma_{epi}}\left(1 - e^{-\Sigma_{epi} \cdot d}\right)} \cdot f_{NA} \tag{11.24}$$

Der Korrekturfaktor f_{NA} berücksichtigt die elementspezifische Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmung des Würfels mit der Kantenlänge d. Dieser Korrekturfaktor ist besonders für Elemente mit einem großen makroskopischen Wirkungsquerschnitt Σ_{th} für die Absorption thermischer Neutronen relevant. Weist ein Element einen großen Wirkungsquerschnitt für die Absorption thermischer Neutronen auf, so werden nur Teilvolumina des Würfels mit thermischen Neutronen aktiviert. Der Korrekturfaktor f_{NA} wird in Abhängigkeit vom makroskopischen Wirkungsquerschnitt und der Gamma-Selbstabschirmung sowie der Kantenlänge des Würfels wie folgt berechnet:

$$f_{NA} = \frac{6}{\Sigma_{th} \cdot \left(\mu/\rho\right)_E \cdot \rho_E \cdot d^2} \qquad \textit{für} \qquad \frac{1}{\Sigma_{th}} < d/2 \tag{11.25}$$

$$f_{NA} = 1 \qquad \textit{für} \qquad \frac{1}{\Sigma_{th}} \geq d/2 \tag{11.26}$$

Falls plausibel zu unterstellen ist, dass die räumlich konzentrierte Elementverteilung in einer Verbindung vorliegt, so sind die in Gl. 11.24 zu verwendenden makroskopischen Wirkungsquerschnitte für die Absorption thermischer und epithermischer Neutronen Σ_{th} und Σ_{epi} für die vorliegende Verbindung gemäß Gl. 11.25 und Gl. 11.26 zu bestimmen.

$$\Sigma_{th} = \rho_V \cdot \frac{N_A}{M} \sum M_i \cdot \sigma_{i,th} \tag{11.27}$$

$$\Sigma_{epi} = \rho_V \cdot \frac{N_A}{M} \sum M_i \cdot \sigma_{i,epi} \tag{11.28}$$

In Gl. 11.25 und Gl. 11.26 ist ρ_V die Dichte der Substanz bzw. Verbindung. Die Verbindung besteht aus der Anzahl i von verschiedenen Elementen. Die molare Masse des i-ten Elements wird als M_i bezeichnet. Ebenfalls die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte für die Absorption thermischer Neutronen $\sigma_{i,th}$ und epithermischer Neutronen $\sigma_{i,epi}$. sind die des i-ten Elements.

Die Massenbestimmung einer räumlich konzentrierten Element- bzw. Substanzverteilung ist für jeden Rotationsschritt, der eine Zählrate detektiert hat, durchzuführen. Der über die Fehler der Zählraten gewichtete Mittelwert der Masse eines räumlich konzentrierten Elements ergibt die zu deklarierende Masse der Element- bzw. Substanzkonzentration (Arbeitsschritt A 10).

Die Validierung der Massenbestimmung für eine räumlich konzentrierte Elementverteilung geschieht anhand der Studie über die positionsabhängige Aktivierung einer Cadmiumprobe innerhalb einer Betonmatrix (siehe Kapitel 10). Als Cadmiumprobe dient ein 134,4 g schweres Cadmiumblech mit einer Stärke von 1 mm und einer Kantenlänge von 124,6 mm. Die Cadmiumprobe wurde an 9 verschiedene radiale (R = 6 cm, 7 cm und 28 cm) und axiale (H = 9 cm, 46 cm und 73 cm) Positionen in der Betonmatrix platziert. Nach der Positionierung erfolgte eine winkelabhängige Neutronen-Aktivierungsanalyse mit der Akquisition von jeweils acht rotationsabhängigen Gamma-Spektren. In Tab. 11.7 wird die Cadmiummasse, die mit dem MEDINA-Quantifizierungsverfahren für räumlich konzentrierte Elementmassen in der Betonmatrix bestimmt wird, aufgeführt.

Tab. 11.7: Quantifizierung einer räumlich konzentrierten Cadmiumprobe in einer Betonmatrix anhand der gemessenen winkelabhängigen Zählratenverteilungen des Cadmiums bei einer Energie von 558,3 keV.

Radialabstand R [cm]	**Höhe H** [cm]	$\Delta\vartheta_{1/2}$ [°]	**r/R ($\Delta\vartheta_{1/2}$)** [cm/cm]	**r** [cm]	**Cadmium-Masse gemäß Gl. 11.24** [g]
28	6	60,9 ± 2,25	0,965 ± 0,065	27,02 ± 1,82	118 ± 35
17	6	75,1 ± 5,78	0,644 ± 0,101	18,03 ± 2,83	100 ± 10
6	6	90,9 ± 43,13	0,426 ± 0,458	11,93 ± 12,8	109 ± 5
28	43	59,0 ± 3,70	1,021 ± 0,114	28,58 ± 3,19	151 ± 16
17	43	75,7 ± 9,74	0,634 ± 0,168	17,75 ± 4,70	114 ± 20
6	43	136,6 ± 37,03	0,138 ± 0,144	3,86 ± 4,03	141 ± 19
28	73	59,0 ± 3,50	1,021 ± 0,108	28,58 ± 3,02	143 ± 7
17	73	80,7 ± 2,67	0,554 ± 0,039	15,51 ± 1,09	140 ± 7
6	73	131,3 ± 68,99	0,160 ± 0,289	4,48 ± 8,09	109 ± 16

Anhand des Quantifizierungsverfahren und der aufgenommenen Zählratenverteilung der vom Cadmium emittierten Prompt-Gamma-Quanten mit einer Energie von 558,3 keV wird für jede Positionierung der Cadmiumprobe in der Betonmatrix eine Masse bestimmt. Die bestimmten Cadmiummassen liegen zwischen (100 ± 10) g und (151 ± 16) g. Bei Positionierung der Cadmiumprobe im unteren Fassbereich kommt es zu einer Unterschätzung durch das Quantifizierungsverfahren. Begründet ist dies durch den niedrigeren Neutronenfluss im unteren Fassbereich, welcher im Quantifizierungsmodell überschätzt wird. In der mittleren und oberen Fassebene sind die Abweichungen deutlich geringer. Im Mittel wird für die neun Positionen der Cadmiumprobe, welche über die komplette Abfallmatrix verteilt sind, eine Cadmiummasse von (125 ± 19) g bestimmt. Dies entspricht einer mittleren Abweichung von der realen Cadmiumprobe von 9,4 g bzw. einer relativen Abweichung bezogen auf die reale Masse der Cadmiumprobe von 6,6 %.

Die Ergebnisse müssen jedoch auf das gesamte 200-l-Fass bezogen werden. Die Masse des 200-l-RRW-Stahlfasses beträgt 52,23 kg und die innerhalb des Fasses durch 76 Betonformkörper modellierte Betonmatrix weist eine Masse von 199,5 kg auf. Die Gesamtmasse des Fasses beträgt demnach 251,73 kg. Die reale Masse der räumlich konzentrierten Cadmiumprobe beträgt nur 0,053 % der Gesamtmasse des Fasses und kann unabhängig von der Positionierung in der Abfallmatrix quantifiziert werden. Die im Mittel durch das Quantifizierungsverfahren bestimmte Masse unterschätzt die räumlich konzentrierte Cadmiummasse bezogen auf die gesamte Fassmasse nur um 7 %.

Der Beschreibungsschwellenwert für Neuabfall von Cadmium im Endlagerungsverfahren Konrad beträgt 1 % der Bruttoabfallgebindemasse. Eine um 18,9-mal geringere Cadmiummasse kann mit dem MEDINA-Analyseverfahren eindeutig in der Betonmatrix quantifiziert werden. Mit dem Quantifizierungsmodell kann für das bei der Validierung verwendete 200-l-Fass unabhängig von der Cadmiumpositionierung und unter Berücksichtigung der systematischen und statistischen Messunsicherheit nachgewiesen werden, dass die in der Betonmatrix enthaltene räumlich konzentrierte Cadmiummasse für eine Endlagerung in der Schachtanlage Konrad nicht beschreibungspflichtig wäre.

Kapitel 12

12 Nachweisgrenzen

Formel-Kapitel (nächster) Abschnitt 12

Zusammenfassung

Ausgehend von den Quantifizierungsalgorithmen für eine homogene sowie für eine räumlich konzentrierte Elementverteilung in einer Betonmatrix werden die Nachweisgrenzen bestimmt. Die Nachweisgrenzen des MEDINA-Messverfahrens sind von der Testeinrichtung, den Bestrahlungs- und Messparametern sowie der Art der Neutronen-Aktivierungs-Analyse abhängig. Die angegebenen Nachweisgrenzen wurden für die MEDINA-Testeinrichtung und den Fall der zyklischen Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse alleinig mit thermischen sowie epithermischen Neutronen berechnet. Es werden die Standardbestrahlungs- und Messparameter vorausgesetzt, wobei die Analyse eines 200-l-Fasses auf der Akquisition von acht rotationsabhängigen Gamma-Spektren mit einer jeweiligen Messzeit von 2000 s basiert. Dies entspricht einer Messzeit von ca. 4,5 Stunden für ein 200-l-Fass.

12.1 Nachweisgrenzen von homogen verteilten Elementen in einer Abfallmatrix

Die Nachweisgrenze ist die minimale Menge eines Elements oder einer Substanz, die mit einem Messverfahren zuverlässig nachgewiesen werden kann. In der Kernstrahlungsmesstechnik existieren verschiedene Verfahren der Bestimmung von Nachweisgrenzen /12-1/. Die Verfahren und Definitionen berücksichtigen und werten verschiedene Einflussfaktoren für die jeweilige Messbedingung. Die Messbedingungen und Gamma-Spektren, die mit MEDINA aufgenommen werden, stellen jedoch bzgl. der Einflussfaktoren einer Messung ein Novum für bestehende Definitionen dar. In der vorliegenden Arbeit ist ein Messwert dann als erbracht bewertet, wenn die Photopeakfläche, welche die Summe der durch die Neutronen-Aktivierung nachgewiesenen Gamma-Quanten beinhaltet, oberhalb von einer Unsicherheit von drei Standardabweichungen der Untergrundfläche B des zu erwartenden Photopeaks liegt. Inwieweit komplexere Verfahren die Bestimmung der Nachweisgrenzen präzisieren können, steht aus. Im Fall von MEDINA ist es von größerer Relevanz, dass der zuverlässige Nachweis für homogene sowie eine räumlich konzentrierte Element- bzw. Substanzverteilung in einer Matrix auf eine repräsentative Messung der jeweiligen Matrix bezogen wird. Dies bedeutet, die nachfolgend bestimmten Nachweisgrenzen von ausgewählten Elementen und Substanzen in einer Betonmatrix wurden aus der Messung eines 200-l-Stahlfasses mit einer Betonmatrix gemäß Standardbestrahlungs- und Messparameter abgeleitet. Auf eine andere Abfallmatrix als eine Betonmatrix sind die Nachweisgrenzen nicht übertragbar. Die relative statistische Unsicherheit u_P auf die Nettopeakfläche P einer Photopeakfläche beträgt:

$$u_P = \sqrt{\frac{P + 2 \cdot B}{P^2}} \tag{12.1}$$

Die Nettopeakfläche P und die Untergrundfläche B sind von der Messzeit t abhängig. Es gilt demnach:

$$P = Z \cdot t \tag{12.2}$$

$$B = R \cdot t \tag{12.3}$$

Hierbei ist Z die Nettozählrate und R die Untergrundzählrate. Durch einsetzen von Gl. 12.2 und 12.3 in Gl. 12.1 erhält man für die relative statistische Unsicherheit der Nettopeakfläche u_P:

$$u_P{}^2 = \frac{Z + 2 \cdot R}{Z^2 \cdot t} \tag{12.4}$$

Nach Lösen der quadratischen Gleichung und auflösen nach der Nettozählrate Z folgt:

$$Z = \frac{1 + \sqrt{1 + 8R \cdot t \cdot u_P{}^2}}{2 \cdot t \cdot u_P{}^2} \tag{12.5}$$

Durch Kopplung der zur Quantifizierung eines im 200-l-Fass homogen verteilten Elements verwendeten Gl. 11.6 mit der relativen statistischen Unsicherheit eines Photopeaks gemäß Gl. 12.5 folgt für die Nachweisgrenze e_h:

$$e_h = \frac{M \cdot \left(1+\sqrt{1+8 \cdot R \cdot t \cdot {u_P}^2}\right)}{2 \cdot N_A \cdot \overline{\Phi_{th}} \cdot (\sigma_{E_\gamma,th} + \frac{0,44 \cdot \sigma_{E_\gamma,th} + \sigma_{E_\gamma,epi}}{5,32}) \cdot \varepsilon_{E_\gamma,M} \cdot t \cdot {u_P}^2} \tag{12.6}$$

Durch diese Gleichung erfolgt für MEDINA die Bestimmung der Nachweisgrenze für eine Aktivierung mit thermischen und epithermischen Neutronen in Abhängigkeit der relativen Unsicherheit der Nettopeakfläche u_P. Es wird zugrunde gelegt, dass die Bestimmung der Nachweisgrenzen auf einem 3-Sigma Konfidenzintervall beruht. Somit kann eine Masse zuverlässig nachgewiesen werden, wenn die detektierte Nettopeakfläche P gleich bzw. oberhalb einer Unsicherheit von drei Standardabweichungen der Untergrundfläche B liegt:

$$P = 3\sqrt{B} \tag{12.7}$$

Für eine relative Unsicherheit auf die Nettopeakfläche u_P von drei Standardabweichungen gilt:

$${u_P}^2 = \frac{3+2\sqrt{R \cdot t}}{9\sqrt{R \cdot t}} \tag{12.8}$$

Setzt man den Term für die relative Unsicherheit u_P^2 in Gl. 12.6 ein, erhält man die Nachweisgrenze e_h für ein in der Fassmatrix homogen verteiltes Element mit einer Unsicherheit von drei Standardabweichungen:

$$e_h = \frac{M \cdot \left(1+\sqrt{1+8R \cdot t \cdot \frac{3+2\sqrt{R \cdot t}}{9\sqrt{R \cdot t}}}\right)}{2 \cdot N_A \cdot \overline{\Phi_{th}} \cdot (\sigma_{E_\gamma,th} + \frac{0,44 \cdot \sigma_{E_\gamma,th} + \sigma_{E_\gamma,epi}}{5,32}) \cdot \varepsilon_{E_\gamma,M} \cdot t \cdot \frac{3+2\sqrt{R \cdot t}}{9\sqrt{R \cdot t}}} \tag{12.9}$$

Diese Gleichung ist von den validierten kernphysikalischen Größen wie den partiellen Wirkungsquerschnitten für einen thermischen und epithermischen Neutroneneinfang $\sigma_{E_\gamma,th}$ und $\sigma_{E_\gamma,epi}$, der molaren Masse des Elements M und der Avogadro-Konstant N_A abhängig. Der integrale thermische Neutronenfluss $\overline{\Phi_{th}}$ wird anhand der Aktivierung einer bekannten Verfüllmatrix und der integralen Photopeak-Effizienz von aus der Matrix emittierten Gamma-Quanten $\varepsilon_{E_\gamma,M}$, oder anhand der Aktivierung des Stahlfasskörpers und der integralen Photopeak-Effizienz von aus dem Fasskörper emittierten Gamma-Quanten $\varepsilon_{E_\gamma,F}$ experimentell bestimmt. Die genannten integralen Photopeak-Effizienzen werden durch numerische Simulationen bestimmt (siehe Abb. 7.4). In der nachfolgenden

Berechnung wird das Kriterium des zuverlässigen Nachweises auf die Messung des aktiven Untergrunds eines 200-l-RRW-Fasses inkl. Betonmatrix bezogen. Die Untergrundzählrate R wird demnach aus dem Spektrum der Bestrahlung eines 200-l-RRW-Fass inkl. Betonmatrix entnommen. Die Nachweisgrenzen sind eine absolute Massenangabe, beziehen sich in Tab. 12.1 und Tab. 12.2 jedoch auf den Nachweis eines homogen in einer Betonmatrix verteilten Elements in einem 200-l-RRW-Fass. Die Bruttomasse des Fasses m_{Fass} beträgt 251,73 kg. Die relativen Nachweisgrenzen werden wie folgt berechnet:

$$e_h\left[\%\right] = \frac{e_h}{m_{Fass}} \cdot 100 \tag{12.10}$$

Die relativen Nachweisgrenzen werden den Beschreibungsschwellenwerten (BSW) für grundwasserrelevante Elemente gemäß dem Planfeststellungsbeschluss Konrad gegenübergestellt. Die Nachweisgrenzen werden in Tab. 12.1 für eine Messzeit von 2000 Sekunden und Tab. 12.2 für eine Messzeit von 16.000 Sekunden aufgelistet.

Tab. 12.1: *MEDINA-Nachweisgrenzen (NWG) bei einer homogenen Elementverteilung in einem 200-l-RRW-Fass mit einer Betonmatrix (ρ = 1,02 g/cm³) und Bestrahlung gemäß Standardbestrahlungs- und Messparameter mit einer Gesamtmesszeit von 2.000 Sekunden im Vergleich zu den elementaren Beschreibungsschwellenwerten (BSW; 1 Prozent = 10.000 ppm) im Endlagerungsverfahren Konrad.*

Ordnungszahl	Element	BSW [%]	NWG [g]	NWG [ppm]	BSW/NWG
3	**Lithium**	1	1085,8	4309	2,32
5	**Bor**	1	0,1	0,5	20000,00
11	**Natrium**	1	1486,8	5900	1,69
17	**Chlor**	1	20,1	80	125,00
19	**Kalium**	1	342,3	1.359	7,36
20	**Calcium**	1	246,6	979	10,21
22	**Titan**	1	152,1	604	16,56
23	**Vanadium**	1	661,0	2624	3,81
24	**Chrom**	1	317,0	1258	7,95
25	**Mangan**	1	471,8	1873	5,34
27	**Kobalt**	1	80,5	320	31,25
28	**Nickel**	1	322,2	1280	7,81
30	**Zink**	1	1059,6	4205	2,38
33	**Arsen**	1	173,6	689	14,51
34	**Selen**	1	315,8	1254	7,97
37	**Rubidium**	1	4890,2	19460	0,51
38	**Strontium**	1	282,5	1121	8,92
47	**Silber**	1	112,3	446	22,42
48	**Cadmium**	1	0,7	2,8	3571,43
51	**Antimon**	1	1086,6	4312	2,32
55	**Cäsium**	1	431,2	1712	5,84
56	**Barium**	1	735,8	2920	3,42
79	**Gold**	1	221,7	880	11,36
80	**Quecksilber**	1	40,6	122	81,97
81	**Thallium**	0,1	6927,7	27490	0,04
82	**Blei**	1	20343,3	80728	0,12
90	**Thorium**	1	3806,2	15104	0,66
92	**Uran**	1	652,1	2588	3,86

Tab. 12.2: *MEDINA-Nachweisgrenzen (NWG) bei einer homogenen Elementverteilung in einem 200-l-RRW-Fass mit einer Betonmatrix (ρ = 1,02 g/cm³) und Bestrahlung gemäß Standardbestrahlungs- und Messparameter mit einer Gesamtmesszeit von 16.000 Sekunden im Vergleich zu den elementaren Beschreibungsschwellenwerten (BSW; 1 Prozent = 10.000 ppm) im Endlagerungsverfahren Konrad.*

Ordnungszahl	Element	BSW [%]	NWG [g]	NWG [ppm]	BSW/NWG
3	**Lithium**	1	135,2	537	18,62
5	**Bor**	1	0,02	0,06	166666,67
11	**Natrium**	1	185,4	736	13,59
17	**Chlor**	1	2,5	10	1000,00
19	**Kalium**	1	42,7	170	58,82
20	**Calcium**	1	30,5	122	81,97
22	**Titan**	1	18,9	75	133,33
23	**Vanadium**	1	82,5	327	30,58
24	**Chrom**	1	39,5	157	63,69
25	**Mangan**	1	58,9	234	42,74
27	**Kobalt**	1	10,1	39	256,41
28	**Nickel**	1	39,4	157	63,69
30	**Zink**	1	132,1	524	19,08
33	**Arsen**	1	21,4	85	117,65
34	**Selen**	1	39,4	157	63,69
37	**Rubidium**	1	609,7	2420	4,13
38	**Strontium**	1	35,2	140	71,43
47	**Silber**	1	14,0	56	178,57
48	**Cadmium**	1	0,085	0,3	33333,33
51	**Antimon**	1	135,6	539	18,55
55	**Cäsium**	1	53,8	214	46,73
56	**Barium**	1	91,5	364	27,47
79	**Gold**	1	27,7	110	90,91
80	**Quecksilber**	1	5,0	16	625,00
81	**Thallium**	0,1	861,9	3420	0,29
82	**Blei**	1	2527,5	10030	1,00
90	**Thorium**	1	474,5	1883	5,31
92	**Uran**	1	81,1	322	31,06

Anhand Tab. 12.1 ist ersichtlich, dass schon bei einer Messzeit von 2000 s die Nachweisgrenzen des Messverfahrens bei homogen verteilten Elementen in einer Betonmatrix geringer sind als die Beschreibungsschwellenwerte des BfS. Allein bei den Elementen Thallium, Rubidium, Blei und Thorium wäre die Sensitivität des Messverfahrens unter den Anforderungen der Annahmebedingungen Konrad. Bei der regulären Messzeit für eine rotationsabhängige Messung eines 200-l-Fasses von 16.000 s sinken auch die Nachweisgrenzen von Rubidium, Blei und Thorium unterhalb der Beschreibungsschwellenwerte. Nur die Anforderungen an das Element Thallium, welches nur einen Beschreibungsschwellenwert von 0,1 % der Bruttoabfallgebindemasse hat, werden durch die verwendeten Messbedingungen und die ausschließliche Anwendung der Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse mit thermischen Neutronen nicht erfüllt. Das Element Thallium bildet bei einer Neutronenbestrahlung jedoch die kurzlebigen Aktivierungsprodukte ^{206m}Tl ($T_{1/2}$ = 3,7 m) und ^{207}Tl ($T_{1/2}$ = 4,77 m). Das MEDINA-Messverfahren könnte so angepasst werden, dass durch PGNAA oder DGNAA ebenfalls die Anforderungen zur Detektion von Thallium ausreichend sind. In Abb. 12.1 werden die berechneten

elementspezifischen Nachweisgrenzen in vier Gruppen klassifiziert und gemäß der Struktur des Periodensystems der Elemente dargestellt.

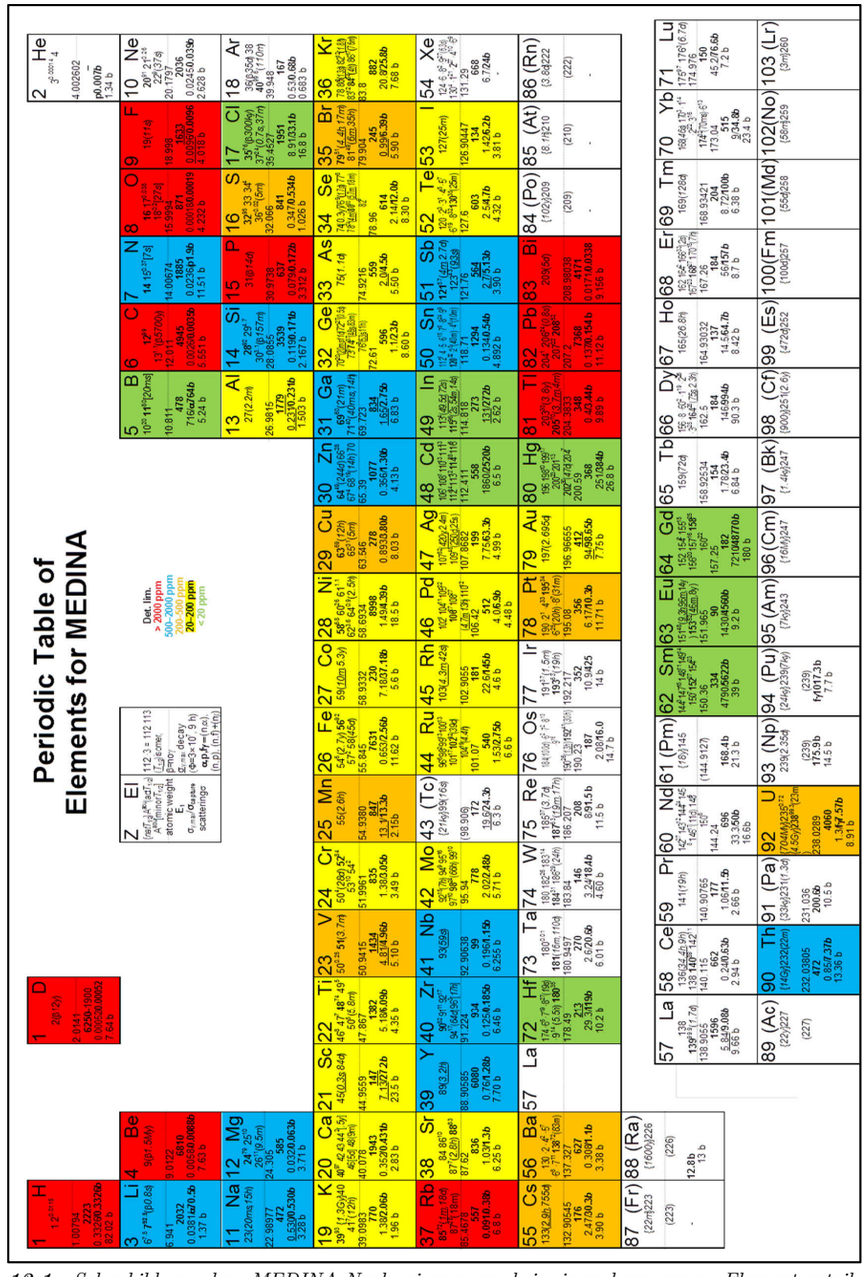


Abb. 12.1: *Schaubild zu den MEDINA-Nachweisgrenzen bei einer homogenen Elementverteilung in einem 200-l-RRW-Fass mit einer Betonmatrix (ρ = 1,02 g/cm³) und Bestrahlung gemäß Standardbestrahlungs- und Messparameter mit einer Gesamtmesszeit von 16.000 Sekunden.*

12.2 Nachweisgrenzen von räumlich konzentrierten Elementen

Die Nachweisgrenzen für mit Bezug auf eine Abfallmatrix räumlich konzentrierte Elemente werden für den Fall bestimmt, dass sich eine räumlich konzentrierte Elementmasse im Fasszentrum befindet. Diese Position ist aufgrund des thermischen Neutronenflusses im Fasszentrum und der maximalen Abschirmung der aus der Elementmasse emittierten Gamma-Quanten durch die Fassmatrix bei einer rotationsabhängigen Analyse konservativ. Durch Kopplung der Gl. 11.24 mit der Gl. 12.8 der relativen statistischen Unsicherheit folgt die Gleichung zur Bestimmung der Nachweisgrenze einer im 200-l-Fass räumlich konzentrierten Elementmasse $e_{k,0}$ ohne die Berücksichtigung von Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmung der räumlich konzentrierten Elementverteilung:

$$e_{k,0} = \frac{M \cdot \left(1 + \sqrt{1 + 8 \cdot R \cdot t \cdot u_p^{\,2}}\right)}{N_A \cdot e^{-\left(\mu/\rho\right)_{Matrix} \cdot \rho_{Matrix} \cdot l} \cdot e^{-\left(\mu/\rho\right)_{Stahl} \cdot \rho_{Stahl} \cdot d} \cdot \phi_{th,0} \cdot \left(\sigma_{E_\gamma} + \frac{\sigma_{epi}}{5{,}32}\right) \cdot \varepsilon_{E_\gamma,0} \cdot t \cdot u_p^{\,2}} \tag{12.11}$$

Der thermische Neutronenfluss im Fasszentrum $\phi_{th,0}$ ist mittels Gl. 11.18 zu bestimmen. Im Fall der Betonmatrix beträgt der thermische Neutronenfluss im Fasszentrum 1920 ± 384 n · cm^{-2} · s^{-1}. Für die energieabhängige Photopeak-Effizienz ist ebenfalls die Photopeak-Effizienz im Fasszentrum $\varepsilon_{E_\gamma,0}$ zu verwenden (siehe Abb. 7.2 und Gl. 7.4). Die Messzeit wird durch die Variable t beschrieben.

Für die Geometrie der räumlichen konzentrierten Elementverteilung wird ein Würfel der Kantenläge d angenommen. Die Konservativität dieses Ansatzes zur Berücksichtigung der Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmung der räumlichen konzentrierten Elementverteilung für die geometrische Form eines Würfels ist in Kapitel 11.3.2 beschrieben. Für die konzentrierte Element- bzw. Substanzmasse im Fasszentrum gilt demnach:

$$e_{k,0} = \rho_E \cdot d^3 \tag{12.12}$$

Die Dichte des Elements ist ρ_E und die Kantenlänge des Würfels wird als d bezeichnet. Für die Kantenlänge der berechneten Elementmasse folgt:

$$d = \left(\frac{e_{k,0}}{\rho_E}\right)^{1/3} \tag{12.13}$$

Anschließend folgt die Bestimmung der Nachweisgrenze e_k unter Berücksichtigung der Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmung für den angenommenen Würfel mit der Kantenlänge d :

$$e_k = \frac{e_{k,0}\left(\mu/\rho\right)_E \rho_E \cdot d}{\left(1-e^{-\left(\mu/\rho\right)_E \cdot \rho_E \cdot d}\right)} d \cdot e^{-\left(\mu/\rho\right)_M \cdot \rho_M \cdot d} \frac{\sigma_{E_\gamma} + \frac{\sigma_{epi}}{5,32}}{\frac{\sigma_{E_\gamma}}{\Sigma_{th}} \cdot \left(1-e^{-\Sigma_{th} \cdot d}\right) + \frac{\sigma_{epi,\gamma}}{5,32 \cdot \Sigma_{epi}} \cdot \left(1-e^{-\Sigma_{epi} \cdot d}\right)} \cdot f_{NA} \quad (12.14)$$

Der Korrekturfaktor f_{NA} berücksichtigt die elementspezifische Neutronen- und Gamma-Selbstabschirmung des Würfels mit der Kantenlänge d und wird gemäß den Gleichungen 11.25 und 11.16 berechnet.

Falls plausibel zu unterstellen ist, dass eine räumlich konzentrierte Elementmasse in einer Verbindung vorliegt, so sind die Wirkungsquerschnitte für die Absorption thermischer und epithermischer Neutronen Σ_{th} und Σ_{epi} für die vorliegende Substanz gemäß Gl. 11.29 und Gl. 11.30 zu bestimmen. In Tab. 12.3 sind die Nachweisgrenzen für räumlich konzentrierte Elementverteilungen in einer Betonmatrix in einem 200-l-RRW-Fass aufgelistet und den Beschreibungsschwellenwerten für grundwasserrelevante Elemente im Endlagerungsverfahren Konrad gegenübergestellt. Die Gesamtmesszeit beträgt 16.000 s. Die Bruttomasse des Fasses m_{Fass} beträgt in diesem Fall 251,73 kg. Die relativen Nachweisgrenzen werden wie folgt berechnet:

$$e_k\left[\%\right] = \frac{e_k}{m_{Fass}} \cdot 100 \quad (12.15)$$

Anhand Tab. 12.3 ist ersichtlich, dass für die meisten räumlich konzentrierten Elemente in einer Betonmatrix die Nachweisgrenzen des MEDINA-Messverfahrens geringer sind als die Beschreibungsschwellenwerte des BfS. Dies bedeutet, für die Mehrzahl von Elementen werden die Anforderungen aus dem Endlagerungsverfahren Konrad bzgl. der Genauigkeit des Messverfahrens, unabhängig davon, ob die Elemente homogen oder räumlich konzentriert in einer Betonmatrix vorliegen, durch MEDINA erfüllt. Hierdurch ist der Nachweis zur erfolgreichen zerstörungsfreien Detektion von grundwasserrelevanten Stoffen wie beispielsweise Cadmium, Arsen, Selen oder Chrom mit der MEDINA-Testeinrichtung erbracht worden. Neben dem Element Thallium, welches schon bei einer homogenen Elementverteilung nicht mit der notwendigen Genauigkeit, beschrieben durch den Beschreibungsschwellenwert, ermittelt wurde, kommen bei einer räumlich konzentrierten Elementverteilung die Elemente Magnesium, Antimon, Gold, Blei, Thorium und Uran hinzu.

Die genannten Elemente, deren Nachweisgrenze oberhalb der Beschreibungsschwellenwerte liegen, können durch eine Anpassung der Bestrahlungs- und Messparameter gemäß den gültigen Anforderungen bzgl. der Sensitivität im Endlagerungsverfahren Konrad ebenfalls erkannt werden. So lässt sich z. B. Blei mit einer größeren Sensitivität erkennen, wenn die Bestrahlungs- und Messparameter für die Detektion der verzögerten Gamma-Quanten aus der Aktivierung des Bleis optimiert werden. Blei wird durch schnelle

Neutronen aktiviert (^{207}Pb(n,2n)^{207m}Pb) und emittiert anschließend verzögerte Gamma-Quanten mit einer Halbwertszeit von 0,8 s und einer Energie von 1063,7 keV.

Neben der Anpassung der Bestrahlungs- und Messparameter ist die geringere Sensitivität des MEDINA-Messverfahrens für die Elemente Gold, Blei, Thorium und Uran dadurch begründet, dass diese Elemente eine hohe Gamma-Selbstabschirmung aufweisen. Die Kopplung von MEDINA mit radiographischen Verfahren könnte jedoch die Konservativitäten bei der Bestimmung der Gamma-Selbstabschirmung reduzieren und zur Steigerung der Sensitivität ein weiterer zielführender Lösungsansatz sein.

Tab. 12.3: *MEDINA-Nachweisgrenzen (NWG) bei einer räumlich konzentrierten Elementverteilung in einem 200-l-RRW-Fass mit einer Betonmatrix (ρ = 1,02 g/cm³) und Bestrahlung gemäß Standardbestrahlungs- und Messparameter mit einer Gesamtmesszeit von 16.000 Sekunden im Vergleich zu den elementaren Beschreibungsschwellenwerten (BSW) im Endlagerungsverfahren Konrad.*

Ordnungszahl	Element	BSW [%]	NWG [g]	NWG [%]	BSW/NWG
3	**Lithium**	1	2528	1,00	1,0
5	**Bor**	1	7	0,003	333,3
11	**Natrium**	1	605	0,24	4,2
12	**Magnesium**	1	5206	2,06	0,5
13	**Aluminium**	1	146	0,06	16,7
16	**Schwefel**	k. A.	366	0,15	-
17	**Chlor**	1	177	0,07	14,3
19	**Kalium**	1	143	0,06	16,7
20	**Calcium**	1	367	0,15	6,7
22	**Titan**	1	7	0,003	333,3
23	**Vanadium**	1	1693	0,67	1,5
24	**Chrom**	1	344	0,14	7,1
25	**Mangan**	1	1693	0,67	1,5
27	**Kobalt**	1	354	0,14	7,1
28	**Nickel**	1	860	0,34	2,9
30	**Zink**	1	1005	0,40	2,5
33	**Arsen**	1	156	0,07	14,3
34	**Selen**	1	1112	0,44	2,3
37	**Rubidium**	1	2163	0,86	1,2
38	**Strontium**	1	111	0,04	25,0
39	**Yttrium**	k. A.	2645	1,10	-
46	**Palladium**	k. A.	1442	0,57	-
47	**Silber**	1	1314	0,52	1,9
48	**Cadmium**	1	9	0,003	333,3
51	**Antimon**	1	9611	3,70	0,3
55	**Cäsium**	1	1333	0,53	1,9
56	**Barium**	1	570	0,23	4,3
79	**Gold**	1	2705	1,07	0,9
80	**Quecksilber**	1	127	0,05	20,0
82	**Blei**	1	18803	7,44	0,1
90	**Thorium**	1	12560	4,97	0,2
92	**Uran**	1	10361	4,1	0,2

Kapitel 13

Zusammenfassung und Ausblick

Zusammenfassung

Abgeleitet aus den dargestellten Ergebnissen der vorliegenden Arbeit wird die Eignung von MEDINA als zerstörungsfreies stoffliches Charakterisierungsverfahren zur Endlagerung von radioaktiven Abfällen in der Schachtanlage Konrad bewertet. Abschließend werden Ansätze für die Weiterentwicklung und Optimierung von MEDINA aufgeführt.

13.1 Eignung von MEDINA im Endlagerungsverfahren

Bereits ohne Anwendungen der nachfolgend vorgestellten Optimierungsansätze kann mit der vorliegenden Arbeit die Leistungsfähigkeit des MEDINA-Analyseverfahrens zur Charakterisierung von radioaktiven Abfallprodukten wissenschaftlich belegt werden. Das MEDINA-Messverfahren wurde für eine zerstörungsfreie stoffliche Charakterisierung radioaktiver Abfälle, verpackt in 200-l-Fässern, entwickelt. MEDINA erfasst, induziert durch eine zyklische Neutronen-Aktivierung, die aus einem 200-l-Abfallfass emittierten prompten und verzögerten Gamma-Quanten. Durch eine Adaption der Bestrahlungsparameter und der Datenakquisition kann das Messverfahren für eine elementspezifische Erkennung bedarfsorientiert angepasst werden. Hierdurch kann die Sensitivität des Messverfahrens für bestimmte Kernreaktionen erhöht werden. Den höchsten Erkenntnisgewinn für eine Multi-Elementquantifizierung erhält man bei der Online-Messung der prompten und verzögerten Gamma-Quanten induziert durch thermische Neutronen. Für diesen Fall wurde die Bestrahlungskammer der MEDINA-Testeinrichtung konzipiert. Hierzu wurden probabilistische MCNP-Simulationen zum Erzielen einer guten Neutronenökonomie durchgeführt. Nach dem Aufbau der Testeinrichtung wurden experimentelle spezifische Anlagenparameter bestimmt. Neben einer experimentellen Energie- und Effizienzkalibrierung und der experimentellen Bestimmung von Neutronenflüssen wurde die mittlere Lebensdauer von thermischen Neutronen innerhalb der Bestrahlungskammer bestimmt. Es wurden für die Testeinrichtung optimierte Standardbestrahlungs- und Messparameter festgelegt, anhand derer durch thermische sowie epithermische Neutronen eine zyklische Aktivierungsanalyse durchgeführt werden kann. Bei einer Analyse eines 200-l-Fasses werden acht hierfür winkelabhängige Gamma-Spektren aufgenommen. Anhand der Zählraten, ermittelt aus den acht winkelabhängigen Gamma-Spektren, ist eine ortsabhängige Multi-Elementquantifizierung des Fassinhalts möglich. Anhand des in Kapitel 2.5 definierten Kriterienkatalogs wird zusammenfassend die Eignung von MEDINA als ein zerstörungsfreies stoffliches Charakterisierungsverfahren für die Endlagerung radioaktiver Abfälle in der Schachtanlage Konrad bewertet.

Repräsentativität der Analyse bei großvolumigen Abfallbehältern

Die Repräsentativität einer Messung ist von zwei Randbedingungen abhängig, dem Gradienten des thermischen und epithermischen Neutronenflusses im Abfallfass und der Abschirmung der aus dem Abfallfass emittierten Gamma-Quanten durch die Abfallmatrix und den Abfallbehälter. Die Eindringtiefe von 14-MeV-Neutronen ist groß genug, alle gängigen Abfallbehälter, die zur Verpackung von Abfallprodukten genutzt werden, repräsentativ zu untersuchen. Bereiche im Abfallbehälter mit hoher Dichte, wie z. B. in Abschirmbehältern verpackte Abfälle in einem 200-l-Stahlfass, stellen für die Neutronen kein Hindernis dar und werden aktiviert. Je stärker eine im Fassinneren befindliche Komponente allerdings Neutronen absorbiert, desto größer ist der Neutronenflussgradient in der Komponente selber. Ein großer Gradient im Neutronenfluss in der Komponente resultiert in einem niedrigen Neutronen-Selbstabschirmungsfaktor der Komponente und einer größeren Fehlerspannweite bei der Elementquantifizierung. Diese Effekte der Neutronen- und Gamma-Selbstabsorption werden bei

MEDINA jedoch berücksichtigt. Das Charakterisierungsverfahren eignet sich, um 200-l-Fässer innerhalb der Nachweisgrenzen des MEDINA-Messverfahrens repräsentativ zu untersuchen.

Genauigkeit und Sensitivität

MEDINA ist ein Multi-Elementquantifizierungsverfahren. Die Nachweisgrenzen für die Fälle der homogenen und der räumlich konzentrierten Elementverteilung in einer Betonmatrix sind in Kapitel 11 aufgeführt. Die Nachweisgrenzen werden den Beschreibungsschwellenwerten des BfS gegenübergestellt. Die Beschreibungsschwellenwerte reglementieren den Massenanteil eines Elements bzw. einer Substanz an der Bruttoabfallgebindemasse eines Fasses, eines Abfallgebindes bzw. einer Abfallcharge, bei dessen Überschreitung der Ablieferungspflichtige diesen Stoff quantifizieren und in der Abfalldokumentation nennen muss. Anhand der Tabellen in Kapitel 12 ist ersichtlich, dass die relativen Nachweisgrenzen von MEDINA für wasserrechtlich relevante Elemente mit wenigen Ausnahmen unterhalb der Beschreibungsschwellenwerte im Endlagerungsverfahren Konrad liegen. In den Fällen, bei denen die relativen Nachweisgrenzen eines Elements über dem für das Element gültigen Beschreibungsschwellenwert liegen, ist eine Anpassung des Verfahrens notwendig. Die einfachste Anpassung ist eine Erhöhung der Messzeit oder eine andere Art der zyklischen Neutronen-Aktivierungs-Analyse (siehe Unterkapitel 4.3). Falls eine solche Adaption nicht genügt, den Anforderungen gerecht zu werden, sind die am Ende dieses Kapitels zur Optimierung des Verfahrens dargestellte Ansätze zielführend.

Der Nachweis von wassergefährdenden Verbindungen ist anhand einer oder mehrerer Leitsubstanzen der Verbindung möglich. Zum Nachweis einer wassergefährdenden Verbindung muss die Nachweisgrenze der Leitsubstanz kleiner als der Massenanteil der Leitsubstanz in der Verbindung, multipliziert mit dem Beschreibungsschwellenwert der Verbindung sein. Dies ist auch bei vielen wassergefährdenden Verbindungen, die z. B. Schwermetalle enthalten, gegeben. Trotzdem kann eine eindeutige Zuordnung der detektierten Leitsubstanz zu einer Verbindung und somit die Identifizierung und Quantifizierung der Verbindungen aufgrund ähnlicher Elementverhältnisse verschiedener Verbindungen schwierig oder sogar unmöglich sein. Nach dem Ausschlussprinzip ist es möglich nachzuweisen, dass wenn die Nachweisgrenze von MEDINA für eine Leitsubstanz geringer ist als die Massenanteile der Leitsubstanz in verschiedenen wassergefährdenden Verbindungen multipliziert mit dem Beschreibungsschwellenwert der jeweiligen Verbindung, und diese Leitsubstanz durch eine MEDINA-Messung nicht detektiert wurde, auch die Verbindungen, die die Leitsubstanz enthalten, nicht im Abfallfass vorliegen. Hierdurch ist es möglich, den Nachweis im Endlagerungsverfahren zu erbringen, dass keine der seitens der Abfallverursacher bzw. Ablieferungspflichtigen verpflichtend anzugebenden wassergefährdenden Stoffe, welche in der Stoffliste /2-4/ des BfS aufgelistet sind, im 200-l-Fass enthalten sind und eine Endlagerung dieses Abfallprodukts bzgl. einer langfristigen Beeinträchtigung des Grundwassers keine Gefährdung darstellt (MEDINA Ausschlussprinzip). Werden durch MEDINA beschreibungspflichtige wassergefährdende Elemente oder Substanzen innerhalb der radioaktiven Abfallprodukte erkannt, so können diese ggf. anhand der Technik identifiziert und quantifiziert werden.

Zunahme der Aktivität durch Analyseverfahren und Sekundärabfall

Da MEDINA ein zerstörungsfreies Messverfahren ist, entstehen im Gegensatz zu zerstörenden stofflichen Analyseverfahren wie z. B. der Bohrkernentnahme, keine Sekundärabfälle. Der Einsatz des Messverfahrens entspricht somit dem Abfallminimierungsgrundsatz und ist deswegen und wegen der besseren Repräsentativität den zerstörenden Verfahren vorzuziehen. Als Folge der Neutronenbestrahlung eines Fasses werden das Inventar und der Fasskörper aktiviert und ggf. kurzzeitig radioaktiv (siehe Unterkapitel 8.5). Die durch die Neutronen-Aktivierung induzierte massenspezifische Radioaktivität hängt von dem Neutronenfluss und der Bestrahlungszeit ab. In Forschungsreaktoren wie z. B. dem FRM II beträgt der Neutronenfluss ca. $10^{14}\,\mathrm{n \cdot cm^{-2}s^{-1}}$. Innerhalb der MEDINA-Bestrahlungskammer beträgt der thermische Neutronenfluss nur ca. $3 \cdot 10^{3}\,\mathrm{n \cdot cm^{-2}s^{-1}}$ und ist somit um den Faktor 33 Milliarden geringer. Zusätzlich wird ein Abfallfass diesem geringeren Neutronenfluss nur wenige Stunden ausgesetzt. Resultierend wird bei einer MEDINA-Messung nur eine sehr geringe und kurzzeitige Aktivität (Residualaktivität) erzeugt, da sowohl die Neutronenemission als auch die Bestrahlungszeit niedrig sind. Analysen an Fässern zeigen beispielsweise, dass die totale induzierte Aktivität eines Fasses eine Stunde nach Bestrahlungsende auf das massenspezifische Aktivitätsniveau einer Kartoffel gesunken ist. Die Zunahme der Aktivität durch das Analyseverfahren ist in Bezug zur Aktivität der Abfälle vernachlässigbar.

Validierung für verschiedene Matrices

Die experimentelle Validierung des Messverfahrens wurde für eine Betonmatrix durchgeführt. Anhand des validierten MCNP-Modells ist eine Simulation anderer Matrices wie Bitumen, Asche oder Salz möglich. Hierdurch können die Störeinflüsse und Matrixeffekte für Neutronenabsorption und Gammaabschirmung quantifiziert werden. Die Validierung in Bezug auf den mittleren integralen Neutronenfluss innerhalb eines 200-l-Fasses erfolgte bis dato nur für eine homogene Betonmatrix und müsste für andere Abfallmatrices ebenfalls analog experimentell durchgeführt werden. Bei inhomogenen Matrices, die z.B. aus Beton und großen Mengen Kunststoff bestehen, müsste die Inhomogenität des Neutronenflusses innerhalb der Matrix untersucht und darüber hinaus nachgewiesen werden, dass der Fasskörper in diesen Fällen ebenfalls als Neutronenflussmonitor geeignet ist. Das dargelegte Multi-Elementquantifizierungsverfahren ist jedoch grundsätzlich auch für andere Matrices geeignet.

Prüfdauer

Die Prüfdauer für ein Abfallprodukt sollte so gering wie möglich angesetzt werden, um die Probe noch mit ausreichender Genauigkeit zu charakterisieren. Eine MEDINA-Messung gemäß den aufgeführten Standardbestrahlungs- und Messparametern benötigt eine Messzeit von ca. 4,5 Stunden. Hinzu kommt der notwendige Zeitbedarf für die Spektralanalyse und die Massenbestimmung, welcher in Abhängigkeit des zu prüfenden Fasses einen bis zwei Personentage in Anspruch nimmt. Hieraus leitet sich die Zielstellung der Automatisierung der Spektralanalyse und der Quantifizierung ab. Die Algorithmen für die

Auswertung wurden in der vorliegenden Arbeit dargelegt. Durch Automatisierung der Auswertung in einer eigenen Software und die Optimierung der Bestrahlungskammer sowie ggf. eine Erhöhung der Neutronenquellstärke ist eine vollständige Charakterisierung eines 200-l-Fasses unter vier Stunden realistisch.

Qualifizierung des Analyseverfahrens

Eine kampagnenabhängige Qualifizierung des MEDINA-Analyseverfahren ist sinnvoll und könnte zeitnah durchgeführt werden. Hierfür müsste die Anwendung des Analyseverfahrens in eine konkrete Konditionierungskampagne im Endlagerungsverfahren Konrad eingebunden werden. Aufgrund der in der vorliegenden Arbeit getätigten Studien zu betonierten Abfällen sollte eine Kampagne, die ebenfalls betonierte Abfälle behandelt, präferiert werden. Das MEDINA-Analyseverfahren würde durch eine im Auftrag des BfS tätige Sachverständigenorganisation bzgl. der stofflichen Beschreibung geprüft und bewertet. Auf Grundlage dieser gutachterlichen Bewertung könnte das BfS das Analyseverfahren für diese Konditionierungskampagne qualifizieren. Dies würde zwar nicht die Anwendbarkeit auf andere betonierte oder z. B. bituminierte Abfallkontingente gestatten, jedoch das Messverfahren formal im Endlagerungsverfahren Konrad grundsätzlich bzgl. einer Eignung bewerten.

13.2 Optimierungsansätze für MEDINA

Das MEDINA-Analyseverfahren wurde zielgerichtet für eine zerstörungsfreie stoffliche Charakterisierung von radioaktiven Abfällen, verpackt in 200-l-Fässern, entwickelt. Das Potential des MEDINA-Analyseverfahrens bzgl. Sensitivität und Genauigkeit der Element- und Verbindungsdetektion wurde bei weitem noch nicht ausgeschöpft. Nachfolgend werden die aus der Arbeit abgeleiteten Ansätze für eine Weiterentwicklung und Optimierung vorgestellt. Die nachfolgend detaillierter vorgestellten Optimierungsansätze lassen sich in drei Bereiche unterteilen:

- Automatisierung der Spektralanalyse und der hieraus abgeleiteten Element- und Verbindungsquantifizierung,
- Optimierung der Bestrahlungseinrichtung inkl. Detektionssystem und
- Kopplung mit radiographischen Analyseverfahren.

Software für die Spektralanalyse und die hieraus abgeleitete Element- & Verbindungsquantifizierung

Die Komplexität der aufgenommen Gamma-Spektren und Auswertealgorithmen zur Elementquantifizierung macht eine manuelle Auswertung der Spektren inkl. Interferenzanalyse, Massenbestimmung und Plausibilitätsprüfung, sehr zeitaufwendig. Die Entwicklung einer eigenen Software für MEDINA ist für eine Routineanwendung aus praktischen Gründen zwingend erforderlich. Inwieweit hierbei auf bestehende Programme zur automatischen Spektralanalyse zurückgegriffen werden

kann, ist fraglich. Die bis dato genutzten Programme erfüllen nicht die gestellten Anforderungen. Bei Eignung einer Software zur automatischen Spektralanalyse der komplexen P&DGNAA-Spektren sollte diese jedoch wenn möglich in eine MEDINA-Software implementiert werden. Die primäre Aufgabe der Software wäre somit die winkelabhängige Spektrenauswertung, die Interferenzanalyse sowie die Identifizierung und Quantifizierung für Elemente und Verbindungen. Eine aus der Elementquantifizierung abgeleitete Erkennung von Verbindungen ist mit Einschränkungen möglich. Hierfür muss mit hoher Präzision ortsaufgelöst im 200-l-Fass die elementare Zusammensetzung des Abfalls bestimmt werden und über einen Algorithmus mögliche Verbindungen über ihr individuelles Elementverhältnis erkannt werden. Anorganische Verbindungen werden einfacher als organische Verbindungen zu identifizieren sein.

Erhöhung der Neutronenquellstärke

Der bei MEDINA verwendete Neutronengenerator hat eine maximale Neutronenquellstärke von $2 \cdot 10^8$ Neutronen pro Sekunde. Die Neutronenquellstärke bei den Standardbestrahlungsparametern betrug $7{,}8 \cdot 10^7$ n/s. Somit ist eine Erhöhung der Quellstärke mit der vorhandenen Hardware um Faktor 2,5 möglich. Mit dem kommerziell erhältlichen Neutronengenerator GENIE 35 ist eine Neutronenquellstärke von $1 \cdot 10^{10}$ n/s und somit eine Steigerung um Faktor 128 realisierbar. Eine Steigerung der Neutronenquellstärke erhöht jedoch auch immer den aktiven Untergrund einer Messung und die Totzeit des Spektrometers. Nur in Kombination mit den nachfolgend aufgeführten Optimierungsansätzen bzgl. Verbesserung der Bestrahlungskammer und der Detektorabschirmung ist eine Steigerung der Neutronenquellstärke sinnvoll. Nachteilig bei der Erhöhung der Neutronenquellstärke ist die gesteigerte Residualaktivität der Probekörper, was ggf. eine längere Abklingzeit erforderlich macht.

Homogenisierung des Neutronenflusses innerhalb der Bestrahlungskammer

Die Inhomogenität im Neutronenfluss innerhalb eines 200-l-Fasses kann durch den Einsatz von mehreren Neutronenpunktquellen oder eine lineare Neutronenquelle reduziert werden. Bei der Verwendung von mehreren Neutronengeneratoren muss jedoch deren Pulsfrequenz synchronisiert werden. Grundsätzlich ist dies nach Aussage der Firma EADS Sodern möglich, jedoch nicht als kommerzielles Standardprodukt erhältlich /13-1/. Neutronenstabquellen werden von der Firma NSD-GRADEL FUSION, Luxembourg, hergestellt. Sie arbeiten mit dem elektrostatischen Trägheitseinschluss eines Plasmas, in dem die Fusionsreaktionen stattfinden und können ebenfalls zyklisch Neutronen mit einer Quellstärke von $5 \cdot 10^8$ n/s emittieren.

Optimierung der Bestrahlungskammer

Möglichkeiten, den aktiven Untergrund bei einer Messung zu reduzieren, bestehen darin, hochwertigere Werkstoffe zu verwenden, die Wandstärke der Wandungen der Bestrahlungskammer zu reduzieren und die Geometrie der Bestrahlungskammer weiter zu verbessern. Eine geringere Graphitmasse der Bestrahlungskammer führt bei der Aktivierung des Graphits zu einer geringeren Anzahl der im Detektor

einfallenden prompten Gamma-Quanten. Es wurden bereits MCNP-Studien angefertigt, die den Einfluss einer geringeren Wandstärke auf den Neutronenfluss innerhalb der Bestrahlungskammer untersuchen. Geringere Graphit-Wandstärken reduzieren den thermischen Neutronenfluss innerhalb der Bestrahlungskammer. Es ist somit eine Abwägung zwischen der Reduktion des thermischen Neutronenflusses in der Bestrahlungskammer und einer Reduktion des aktiven Untergrunds durchzuführen. Eine geringere Graphitmasse für den Bau der Bestrahlungskammer würde auch die Kosten für die Verwendung von Nukleargraphit anstatt konventionellen Graphits reduzieren. Durch die geringeren Verunreinigungen im Nukleargraphit würde der aktive Untergrund reduziert und der thermische Neutronenfluss in der Bestrahlungskammer erhöht.

Optimierung des Detektorsystems

Unabhängig vom verwendeten Detektortyp (HPGe- oder Szintillations-Detektor) ist eine Abschirmung des Detektors gegen thermische, epithermische sowie schnelle Neutronen empfehlenswert. Neutronen, die mit dem Detektor wechselwirken, erhöhen den aktiven Untergrund einer Messung und können den Detektor nachhaltig schädigen. Die bei MEDINA derzeit um den HPGe-Detektor verbaute Abschirmung ist wirksam gegenüber thermischen Neutronen. Die Detektorabschirmung kann deutlich verbessert werden, indem in einem angepassten Abschirmungskonzept ebenfalls epithermische und schnelle Neutronen berücksichtigt werden und somit deren Wechselwirkungen mit dem Detektor reduziert werden. Ein solches Abschirmungskonzept sollte als weitere Zielgröße die Abschwächung der vom Graphit emittierten Gamma-Quanten aufweisen. Die aus dem Graphit emittierten Gamma-Quanten erhöhen den aktiven Untergrund einer Messung. Der ortsnah um den Detektor verbaute Graphit hat den größten Einfluss auf den aktiven Untergrund. Ein optimiertes Abschirmungskonzept erhöht die Peak/Untergrundverhältnisse der detektierten Gamma-Quanten und somit die Sensitivität des Analyseverfahrens. Durch ein optimiertes Abschirmungskonzept kann es ggf. möglich sein, prompte Gamma-Quanten, induziert durch schnelle Neutronen, während des Neutronenpulses zu messen und somit zusätzliche Informationen für die Elementidentifikation und -quantifizierung aufzunehmen.

Der in der MEDINA-Testeinrichtung verbaute HPGe-Detektor ist ein koaxialer Detektor. Durch Verwendung eines Teleskopdetektors kann der Gamma-Energiebereich segmentiert gemessen werden. Bei einem Teleskopdetektor sind zwei Germaniumkristalle hintereinander im Detektorkopf positioniert. Nahe zur Endkappe sitzt ein planarer Detektor, welcher eine hohe Auflösung im unteren Energiebereich hat. Dahinter schließt sich ein größerer Kristall für Messungen im höheren Energiebereich an. Da dieser Detektor für den Nachweis höherenergetischer Quanten gedacht ist, wirkt sich die durch den vorgelagerten Planardetektor im unteren Energiebereich hervorgerufene Abschwächung nicht nachteilig aus. Durch ein solches Detektionssystem könnte im MEDINA-Analyseverfahren insbesondere die Auflösung und Effizienz im unteren Energiebereich verbessert werden. Die Herausforderung bei der Konzeption eines Teleskopdetektors ist es, die Größe der Kristalle sowie die sonstigen Charakteristika des Spektrometers inkl. Detektorabschirmung an die Anforderungen bei MEDINA anzupassen.

Der bei MEDINA im Einsatz befindliche HPGe-Detektor wird durch die hohe Prompt-Gamma-Ereignisrate während und kurz nach einem 14-MeV-Neutronenpuls paralysiert. In diesem Zeitfenster ist somit keine auswertbare Spektrenakquisition möglich. Die komplementäre Verwendung eines Szintillationsdetektors mit hoher Zeitauflösung, der ebenfalls das 200-l-Fass integral erfasst, würde den Nachweis von Kernreaktionen mit schnellen Neutronen ermöglichen. Aufgrund der hohen Zeitauflösung eines Szintillationsdetektors mit angepasstem Photomultiplier und Nuklearelektronik ist mit einem solchen System eine Spektrenakquisition während des Neutronenpulses zur Erfassung von Gamma-Emissionen, verursacht durch inelastischen Streuungen an Atomkernen sowie die von prompten Gamma-Emissionen durch den Kerneinfang schneller Neutronen, möglich. Hierfür gut geeignete Szintillationsdetektoren wären z. B. die Detektoren aus Lanthanbromid ($LaBr_3$:Ce), die eine bis zu einem Faktor 2 bessere Auflösung als NaI-Detektoren aufweisen und zudem temperaturstabiler sind. Die gewisse Eigenradioaktivität des Lathan, welche den Nachteil hat, dass sie für die Messung niedriger Aktivitäten eher ungeeignet sind, hat bei einer Pulsed Fast and Thermal Neutron Activation Analysis (PTFNA), wie sie dann im MEDINA-Analyseverfahren durchgeführt werden würde, aufgrund der hohen Zählraten, keine Relevanz. Eine deutliche Verbesserung der Nachweisgrenzen durch einen Szintillationsdetektor mit hoher Zeitauflösung und hoher Photopeak-Effizienz ist jedoch nicht zu erwarten, da die schlechtere Auflösung der Szintillationsdetektoren im Vergleich zu Halbleiterdetektoren zu keinem verbesserten Peak/Untergrundverhältnis führt und interferierende Gamma-Peaks schlechter voneinander getrennt werden können. Szintillationsdetektoren sind jedoch wartungsärmer, da sie nicht gekühlt werden müssen.

Da bei der PTFNA nach dem Beginn eines Neutronenpulses verschiedene Messfenster für die Spektrenakquisition notwendig sind, bedingt die PTFNA eine zeitaufgelöste Digitalspektroskopie. Durch eine zeitaufgelöste Spektroskopie kann ermittelt werden, ob die detektierten Gamma-Quanten durch schnelle, resonante, epithermische oder thermische Neutronen induziert werden. Bei Verwendung der zeitaufgelösten Digitalspektroskopie ist es notwendig, verschiedene Gruppen von Neutronen-Kernwechselwirkungen zeitabhängig zu klassifizieren und gemäß Unterkapitel 4.3 auszuwerten. Die erste Gruppe wären Kernwechselwirkungen während des Neutronenpulses. Gruppe zwei wären Kernwechselwirkungen im Zeitbereich eines epithermischen und resonanten Neutronenflusses. Gruppe drei wäre das Zeitfenster für den Nachweis von Kernwechselwirkungen mit thermischen Neutronen und Gruppe vier wäre der Zeitbereich zum Nachweis von verzögerten Gamma-Quanten, emittiert von Aktivierungsprodukten mit einer Halbwertszeit von Millisekunden bis Minuten. Mit diesem Ansatz können in jedem Zeitfenster Neutroneneinfangreaktionen mit einem niedrigeren Signal/Untergrund-Verhältnis nachgewiesen werden. Dieser zusätzliche Erkenntnisgewinn würde die Zuverlässigkeit des Quantifizierungsverfahrens erheblich verbessern.

Kopplung mit radiographischen Verfahren

Zur Verfügung stehende zerstörungsfreie bildgebende Verfahren wie die Gamma- oder die Neutronen-Radiographie geben Auskunft über das Absorptionsverhalten eines Raumelements für Neutronen- oder Gamma-Strahlung. Eine Kopplung der Ergebnisse dieser radiographischen Verfahren mit der MEDINA-Analyse erhöht zwar die Gesamtanalysezeit eines 200-l-Abfallfasses, steigert jedoch die Präzision. Die Präzisionszunahme geschieht durch den Abbau von Konservativitäten im Quantifizierungsverfahren. Die im MEDINA-Messverfahren unbekannten Parameter wie die genauen räumlichen Abmessungen und die horizontale Lage einer Komponente im Fassinneren können durch bildgebende Verfahren ermittelt werden, in das Quantifizierungsmodell mit einfließen und dadurch Unsicherheiten für die Gamma- und Neutronenselbstabschirmung reduzieren.

Schlussbemerkung

Das MEDINA-Analyseverfahren ist innerhalb der dargelegten Grenzen für eine stoffliche Charakterisierung radioaktiver Abfallprodukte, verpackt in 200-l-Fässern, geeignet. Die 94 grundwasserrelevanten Substanzen, die gemäß Planfeststellungsbeschluss für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerkes Konrad verpflichtend bei der Endlagerung zu bilanzieren sind, bestehen aus 38 einzelnen Elementen und 56 Verbindungen. Die 38 Elemente können im Rahmen der dargelegten Nachweisgrenzen des Verfahrens in einem 200-l-Abfallfass ortsunabhängig erkannt werden. Durch das MEDINA-Analyseverfahren kann zerstörungsfrei der messtechnische Nachweis erbracht werden, ob ein grundwasserrelevantes Element oder eine Verbindung in einem 200-l-Fass in unzulässiger Menge vorhanden ist oder nicht (MEDINA-Ausschlussprinzip). Das Verfahren ermöglicht eine mittels Stoffvektoren getätigte Beschreibung eines Abfallfasses zu verifizieren. Für eine zuverlässige Quantifizierung von wassergefährdenden Verbindungen ist eine Weiterentwicklung des Analyseverfahrens notwendig.

Für konditionierte Altabfälle mit einem unzureichenden Dokumentationsgrad stellt MEDINA zur Zeit die einzige Möglichkeit dar, 200-l-Abfallfässer repräsentativ und zerstörungsfrei bzgl. ihrer Zusammensetzung zu beschreiben. Mit MEDINA steht dem Ablieferungspflichtigen ein messtechnisches Werkzeug zur Verfügung, das ermöglicht, gegenüber den zuständigen Behörden und den Sachverständigen den Nachweis zu erbringen, dass die im Endlagerungsverfahren Konrad beschreibungspflichtigen wassergefährdenden Substanzen nicht in unzulässiger Menge enthalten sind. Eine kampagnenabhängige Qualifizierung des Messverfahrens durch das BfS ist erstrebenswert, um das Messverfahren nutzbringend bei der Produktkontrolle für das Endlager Konrad zu implementieren.

Kapitel 14

14. Abkürzungsverzeichnis

AtG	Atomgesetz
AVV	Abfallverzeichnisverordnung
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BSW	Beschreibungsschwellenwert
DBE	Deutschen Gesellschaft zum Bau und Betrieb von Endlagern für Abfallstoffe mbH
DGNAA	Verzögerte-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse
DIN	Deutsches Institut für Normung e. V.
DSW	Deklarationsschwellenwert
GrWV	Grundwasserverordnung
IAEA	International Atomic Energy Agency
KrW-/AbfG	Kreislaufwirtschafts- und Abfallgesetz
NAA	Neutronen-Aktivierungs-Analyse
NLWKN	Niedersächsischer Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz
NMU	Niedersächsisches Ministerium für Umwelt und Klimaschutz
NWG	Niedersächsisches Wassergesetz
PCB	Polychlorierte Biphenyle
PE	Polyethylen
PFB	Planfeststellungsbeschluss für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerkes Konrad
PGNAA	Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse
PP	Polypropylen
ReVK	Reststoff-Verfolgungs- und -Kontroll-System
StrlSchV	Strahlenschutzverordnung
VwVwS	Verwaltungsvorschrift wassergefährdende Stoffe
WHG	Wasserhaushaltsgesetz

Kapitel 15

15. Begriffsdefinitionen

Die Begriffe sind in Anlehnung an die formalen Vorgaben des Bundesamts für Strahlenschutz (BfS) im Endlagerungsverfahren Konrad definiert (siehe im Literaturverzeichnis /1-1/1-2/1-3/2-2/2-3/2-4/2-5/).

Abfallart (waste type)	Art des anfallenden radioaktiven Rohabfalls (z. B. brennbare feste Stoffe, Schrott, Ionenaustauscherharze)
Abfallbehälter (waste container)	Behälter zur Aufnahme eines Abfallprodukts (z. B. Fass, Betonbehälter, Gussbehälter, Container). Ein Fass gilt für das Endlager Konrad als Innenbehälter.
Abfallbehälterklasse (waste container class)	Eine Abfallbehälterklasse umfasst Abfallbehälter mit vergleichbarem Freisetzungsverhalten von radioaktiven Stoffen.
Abfallbehandlung (waste treatment)	Verarbeitung von ggf. vorbehandelten radioaktiven Rohabfällen zu Abfallprodukten (z. B. durch Verfestigen, Einbinden, Vergießen oder Trocknen)
Abfallcharakterisierung (waste characterization)	Ermittlung der endlagerrelevanten Eigenschaften von Abfallgebinden mit Angabe von Bandbreiten
Abfalldatenblatt (waste data sheet)	Datenblatt mit endlagerrelevanten Angaben über Abfallgebinde

Abfallfass (waste drum)	Innenbehälter zur Aufnahme eines Abfallprodukts, der in einen endlagerzulässigen Abfallbehälter eingesetzt wird
Abfallgebinde (waste package)	Endzulagernde Einheit aus Abfallprodukt und endlagerzulässigem Abfallbehälter
Abfallmatrix (waste matrix)	Ausgehärtetes Fixierungsmittel, in dem radioaktiver Abfall fixiert ist
Abfallprodukt (waste form)	Verarbeiteter radioaktiver Abfall ohne Verpackung
Abfallproduktgruppe (waste form group)	Eine Abfallproduktgruppe umfasst Abfallprodukte mit vergleichbarem Freisetzungsverhalten von radioaktiven Stoffen.
Abfallstrom (waste stream)	Gleichartige Mischung von Materialien, entweder endlagergerecht konditioniert (d.h. verarbeitet und verpackt) oder als konditionierter Abfall ohne Verpackung. Aufgrund der gleichartigen Zusammensetzung innerhalb der im Stoffantrag angegebenen Bandbreiten kann ein Abfallstrom durch einen Stoffvektor beschrieben werden.
Abfallvorbehandlung (waste pretreatment)	Vorstufen der Abfallbehandlung (z. B. Kalzinieren, Konzentrieren, Verbrennen)
Abweichung (deviation)	Abweichung ist die Nichtübereinstimmung der festgestellten Beschaffenheit mit einer vorgegebenen Soll-Beschaffenheit.
Aktivität (activity)	Aktivität ist die Anzahl der pro Zeiteinheit in einem radioaktiven Stoff auftretenden Kernumwandlungen. Die Maßeinheit der Aktivität ist das Becquerel (Kurzzeichen: Bq), mit der die Anzahl der radioaktiven Kernumwandlungen pro Sekunde angegeben wird. Da die Radionuklide in Stoffmengen unterschiedlicher Konfiguration enthalten sein können, wird die Aktivitätsangabe auch häufig auf diese bezogen, z. B. Becquerel pro Gramm (Bq/g) in Feststoffen, Becquerel pro Liter (Bq/l) in Flüssigkeiten oder Becquerel pro Kubikmeter (Bq/m^3) in Luft. Die alleinige Angabe der Aktivität ohne Kenntnis des Radionuklids lässt keine Aussage über die Strahlenexposition zu.
Altabfall (historic waste)	Radioaktiver Abfall, der zum Zeitpunkt der Bestandskraft des Planfeststellungsbeschluss Konrad (Beschlüsse des Bundesverwaltungsgerichts vom 26. März 2007, bekannt gegeben am 03. April 2007) bereits konditioniert bei den Abfallverursachern oder bei Dritten im Sinne von § 78 StrlSchV lagert.

Ausprägung (configuration)	Chemische Form, in der ein Stoff in Abfällen auftritt (z.B. in metallischer Form, als Salz oder in einer bestimmten Verbindung)
Ausschöpfungsanteil (exhaustion part)	Anteil an der Ausschöpfung der Deklarationsschwelle für einen Stoffbestandteil (Bezugsgröße Abfallgebinde). Die Überschreitung von eins führt zur Bilanzierung dieses Bestandteils.
Barriere, geologische (geological barrier)	Geologische Gegebenheit zur Verhinderung unzulässiger Freisetzung von radioaktiven Stoffen (z. B. Endlagerformation, Nebengestein, Deckgebirge)
Barriere, technische (engineered barrier)	Technische Maßnahme zur Verhinderung unzulässiger Freisetzung von radioaktiven Stoffen (z. B. Abfallprodukt, Verpackung, Versatz, Schachtverschluss)
Bauart (design)	Die in technischen Zeichnungen und Spezifikationen erfasste und durch Prüfzeugnis festgelegte Beschreibung eines Behälters
Bauartprüfung (type test)	Die Bauartprüfung besteht aus experimentellen und/oder analytischen Untersuchungen von Prototypen, Serienmustern, Modellen, Abschnitten oder dergleichen bzw. anhand eingereichter Unterlagen, der Prüfung der QS-Unterlagen für die Fertigung der zu prüfenden Bauart, der Wertung der Baumusterprüfergebnisse, der Beurteilung der konstruktiven Gestaltung, der Prüfung der Festigkeitsberechnung, der Tauglichkeit von Werkstoffen und der Durchführbarkeit von Prüfungen in Bezug auf die Anforderungen.
Baumuster (type)	Reale Ausführung einer Bauart
Behälterliste (container list)	Einheitliche zentrale, vom BfS verwaltete Liste von Behältern und Abfall- und Innenbehältern, aus der die stoffliche Zusammensetzung der Behälter hervorgeht
Behandlung radioaktiver Abfälle (treatment of radioactive waste)	Verarbeitung von radioaktiven Abfällen zu Abfallprodukten (z. B. durch Verfestigen, Einbinden, Vergießen oder Trocknen)
Beschreibungs-schwellenwert (threshold for description)	Massenanteil eines Stoffes im Abfallgebinde, bei dessen Überschreitung der Stoff in der Beschreibung der Zusammensetzung des Abfallgebindes vom Abfallverursacher angegeben werden muss
Bezugsgröße (reference quantity)	Masse, auf die sich Prozentangaben bei der Beschreibung und Deklaration von Zusammensetzungen beziehen und auf die der Anteil eines Stoffes beim Vergleich mit dem Beschreibungs- bzw. Deklarationsschwellenwert bezogen wird
Bituminierung (bituminization)	Fixierung von radioaktivem Abfall in einer Bitumenmatrix

Deklarationsschwellenwert (threshold for declaration)	Massenanteil eines Stoffes im Abfallgebinde, bei dessen Überschreitung eine schädliche Veränderung des oberflächennahen Grundwassers nicht ausgeschlossen werden kann. Die im PFB begrenzten Stoffe müssen bei Überschreitung des DSW bilanziert werden. Schädliche Stoffe, die im PFB nicht ausdrücklich benannt sind, dürfen in Mengen oberhalb des DSW nicht eingelagert werden.
Dichtheit (tightness)	Ein Behälter bzw. eine Verpackung gilt als dicht, wenn mit dem gewählten Prüfverfahren und der erforderlichen Prüfempfindlichkeit bzw. der dem Verfahren entsprechenden Nachweisempfindlichkeit das Durchtreten des Prüfmediums von einem Raum in den anderen oder nach außen nicht nachgewiesen werden kann. Im gleichen Sinne gebräuchliche Bezeichnung: Dichtigkeit.
Einbinden (embedding)	Einbettung von festem, nicht formstabilem radioaktiven Abfall in ein Fixierungsmittel (z. B. Asche, Pulver, Granulat)
Endlagerung (disposal)	Wartungsfreie, zeitlich unbefristete und sichere Beseitigung von radioaktivem Abfall ohne beabsichtigte Rückholbarkeit
Endlagerungsbedingungen (waste acceptance requirements)	Unter Berücksichtigung von standortspezifischen Gegebenheiten festgelegte Anforderungen an endzulagernde Abfallgebinde
Entwässerung (dewatering)	Entzug des freien Wassers aus wasserhaltigem radioaktivem Rohabfall bis zu einem Restfeuchtegehalt
Fertigungs- und Prüffolgeplan (FPP) (test and inspection sequence plan)	Auflistung aller Fertigungs- und Prüfschritte i. a. in chronologischer Reihenfolge, die zur Herstellung oder Montage eines Bauteils oder eines Baumusters und zur Ermittlung festgelegter Qualitätsmerkmale erforderlich sind
Fixierung (immobilization)	Verfestigen, Einbinden oder Vergießen von ggf. vorbehandeltem radioaktivem Abfall
Fixierungsmittel (immobilization material)	Material zur Fixierung von radioaktivem Abfall (z. B. Glas, Zement/Beton, Bitumen, Kunststoff)
Freisetzung (release)	Entweichen von radioaktiven Stoffen aus einem durch eine oder mehrere Barrieren begrenzten Bereich (z. B. Abfallprodukt, Abfallgebinde, Einlagerungskammer, Endlager)
Garantiewert (guaranteed value)	Aus der Sicherheitsanalyse für den bestimmungsgemäßen Betrieb eines Endlagers abgeleitete Werte für Aktivitätsbegrenzungen von Radionukliden und Radionuklidgruppen pro Abfallgebinde

Grenzkonzentration (limiting concentration)	Begrenzung schädlicher Stoffe aus einschlägigen wasserrechtlichen Regelwerken, die nicht überschritten werden darf, um eine schädliche Verunreinigung des oberflächennahen Grundwassers auszuschließen
Innenbehälter (inner container)	Behälter zur Aufnahme von Abfallprodukten, der in einen Abfallbehälter eingesetzt wird
Kategorisierung (categorization)	Einteilung des radioaktiven Abfalls nach Herkunft, Behälter, Fixierung und Abfallart
Klassifizierung (classification)	Qualitative Einteilung des radioaktiven Abfalls, z. B. auf der Basis des Radionuklidinventars. Ältere gebräuchliche Bezeichnung: schwach-, mittel- und hochradioaktiver Abfall
Kodierung (coding)	Kennzeichnung des kategorisierten radioaktiven Abfalls, z. B. mit Kennbuchstaben und Kennziffern
Kompaktierung (compaction)	Zusammenpressen von festem radioaktivem Abfall zu Presslingen
Konditionierung (conditioning)	Herstellung von Abfallgebinden durch Verarbeitung und/oder Verpackung von radioaktivem Abfall
Konventionelles Abfallrecht (conventional waste legislation)	Nicht-nukleares Abfallrecht
Kunststoffixierung (immobilization in plastics)	Fixierung von radioaktivem Abfall in einer Kunststoffmatrix
Lieferschein (delivery note)	Datenblatt mit beförderungsrelevanten Angaben über Abfallgebinde
Maximale Fracht (maximum load)	Zulässige Masse eines Stoffes, dessen Einlagerung im Endlager Konrad nicht zu einer schädlichen Verunreinigung des oberflächennahen Grundwassers (bzw. Überschreitung von Grenzkonzentrationen) führt
Mehrbarrierensystem (multibarrier system)	Kombination von geologischen und technischen Einzelbarrieren
Neuabfall (waste)	Radioaktiver Abfall, der kein Altabfall ist
Pressling (compacted waste)	Mit hohem Druck ggf. in einer Metallkartusche oder –trommel zusammengepresster fester radioaktiver Abfall

Produktkontrolle (waste package quality assurance)	Nachweis der Einhaltung der Endlagerungsbedingungen von Abfallgebinden
Qualitätssichernde Maßnahmen (quality assurance measure)	Qualitätssichernde Maßnahmen umfassen alle organisatorischen und technischen Maßnahmen zur Sicherung der Qualität. Sie sind anzuwenden in den Bereichen Planung, Fertigung und Betrieb.
Radioaktive Abfälle (radioactive waste)	Radioaktive Stoffe im Sinne des § 2 Abs. 1 des Atomgesetzes, die nach § 9a des Atomgesetzes geordnet beseitigt werden müssen, ausgenommen Ableitungen im Sinne des § 47 StrlSchV
Radionuklid (radionuclide)	Ein Radionuklid ist ein instabiles Nuklid, das spontan ohne äußere Einwirkung unter Aussendung energiereicher (ionisierender) Strahlung in ein anderes Nuklid zerfällt.
Radionuklidinventar (radionuclide inventory)	Radionuklide und entsprechende Aktivitäten, die z. B. in einem Abfallgebinde oder in einer Einlagerungskammer enthalten sind.
Radiotoxizität (radiotoxicity)	Maß für die Gesundheitsschädlichkeit eines Radionuklids im menschlichen Körper, wenn es durch Ingestion aufgenommen wird
Reststoff (remnant)	Beim Umgang mit radioaktiven Stoffen anfallende, nicht direkt verwertbare Stoffe
Rohabfall (primary waste)	Unverarbeiteter radioaktiver Abfall
Schädliche Verunreinigung des Grundwassers (ground water contamination)	Überschreitung von Konzentrationen schädlicher Stoffe im oberflächennahen Grundwasser, bei dem relevante ökotoxische und humantoxische Wirkungen auftreten können
Schädlicher Stoff (toxic substances)	Stoff, der in der Anlage zur Grundwasserverordnung vom 27.03.1997, Liste I und Liste II, aufgeführt ist, oder für den in der Trinkwasserverordnung oder anderen Regelwerken Prüf-/Grenzwerte festgesetzt sind
Schlupf (backlash)	Menge eines Stoffes, die den Deklarationsschwellenwert unterschreitet, deren wasserrechtliche Unbedenklichkeit nachgewiesen wurde und die endgelagert wird ohne im Rahmen der Bilanzierung erfasst zu werden
Schutzziele (protection objectives)	Schützenswerte Ziele in Rechtsvorschriften
Serienmuster (seriel specimen)	Behälter gemäß einer Bauart, für die ein Prüfzeugnis vorliegt

Sicherheitsanalyse (safety assessment)	Berechnungen und Untersuchungen möglicher radiologischer Auswirkungen eines Endlagers im bestimmungsgemäßen Betrieb, in der Nachbetriebsphase und bei Störfällen
Spurenverunreinigung (trace impurity)	Bestandteil eines Abfallgebindes unterhalb des Deklarationsschwellenwertes, so dass eine schädliche Veränderung des oberflächennahen Grundwassers sicher ausgeschlossen ist
Stoff (substance)	Mit dem Begriff Stoff sind diejenigen Stoffe gemeint, die in der Gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis aufgeführt und zu bilanzieren bzw. in der Erlaubnis nicht aufgeführt und nur als Spurenverunreinigungen zugelassen sind.
Stoffgemisch (material-mixture)	Gesamtheit von unterschiedlichen Ausprägungen eines oder mehrerer Stoffe
Stoffliche Beschreibung (material composition)	Auflistung von Stoffen als Bestandteile eines Gebindes und deren Massen. Die Summe der Massen der Bestandteile ergibt das Bruttogewicht des Abfallgebindes.
Stoffliche Produktkontrolle (material product control)	Produktkontrolle zur Überprüfung der stofflichen Zusammensetzung von radioaktiven Abfallgebinden. Die stoffliche Produktkontrolle ergänzt die in der Produktkontrolldokumentation /7/ spezifizierte radiologische Produktkontrolle.
Stoffliste (material list)	Einheitliche zentrale, vom BfS verwaltete Liste von Stoffen für die stoffliche Beschreibung und Deklaration radioaktiver Abfälle
Stoffvektor (material vector)	In der Stoffliste aufgeführte, in ihrer prozentualen Zusammensetzung abfallspezifisch definierte Stoffgemische
Tauschpalette (pool pallet)	Wiederverwendbare Vorrichtung zur Beförderung von zylindrischen Abfallgebinden
Thermische / radiologische Abschirmung (thermal / radiological shield)	Materialien, die innerhalb des Abfall- oder Innenbehälters angebracht werden, um die Strahlung nach außen zu reduzieren oder thermische Einwirkungen zu vermindern (z. B. Blei)
Transporteinheit (shipping unit)	Quaderförmiges Abfallgebinde oder mit zylinderförmigen Abfallgebinden beladene Tauschpalette/Transportpalette
Trocknung (dehydration)	Überführung von wasserhaltigem radioaktivem Rohabfall in ein festes Abfallprodukt durch thermischen Entzug von Wasser
Veraschung (incineration)	Überführung (z. B. Verbrennung, Pyrolyse) von brennbarem radioaktivem Abfall in Asche

Verfahrensqualifikation (process qualification)	Nachweis, dass mit einem Konditionierungsverfahren Abfallgebinde mit Eigenschaften innerhalb der zulässigen Bandbreiten hergestellt werden
Verfestigen (solidification)	Überführung von flüssigem oder flüchtigem radioaktiven Abfall in ein festes Abfallprodukt (z. B. mit Hilfe eines Fixierungsmittels)
Vergießen (casting)	Verfüllen von Hohlräumen in und zwischen festem, formstabilem radioaktiven Abfall, z. B. Schrott (einschließlich dem Vergießen von z. B. Innenbehältern oder Presslingen im Abfallbehälter)
Verpackung (packaging)	Gesamtheit der ein Abfallprodukt umschließenden, nicht wiederverwendbaren Behälter
Versandstück (package)	Versandfertige Verpackung mit radioaktivem Inhalt
Vorprüfung (document and design review)	Die Vorprüfung besteht aus der Prüfung der Herstellungsverfahren und der Prüfpläne für die Fertigung, Handhabung und Wartung von Baumustern
Voruntersuchungen (preexamination)	Im Zusammenhang mit einer Verfahrensqualifikation oder der Abfallverarbeitung erforderliche Untersuchungen (z. B. an Rohabfall und Fixierungsmittel)
Werksachverständiger (plant expert)	Ein Werksachverständiger ist eine von der Werksleitung mit bestimmten Aufgaben betraute Person mit der erforderlichen Sachkunde, die in der Erfüllung dieser Aufgabe von der für die Produktion zuständigen Organisationseinheit unabhängig ist
Zementierung (cementation)	Fixierung von radioaktivem Abfall in einer Zementstein-/Beton-Matrix
Zugezogener Sachverständiger (technical support organisation)	Ein zugezogener Sachverständiger ist ein Sachverständiger einer unabhängigen Prüfinstitution, der dem BfS die für dieses Arbeitsgebiet erforderliche Sachkunde nachgewiesen hat.
Zusammensetzung (material composition)	Auflistung von Stoffen als Bestandteile eines Gebindes und deren Massen. Die Summe der Massen der Bestandteile ergibt das Bruttogewicht des Abfallgebindes.
Zwischenprodukt (alt) (intermediate waste form)	Radioaktiver Abfall, der zum Zeitpunkt der Bestandskraft der Erlaubnis /4/ (Beschlüsse des Bundesverwaltungsgerichts vom 26. März 2007, bekannt gegeben am 03. April 2007) behandelt war

Kapitel 16

Literaturverzeichnis

Kapitel 1

/1-1/ *Niedersächsische Landesbetriebs für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz (NLWKN):* **Aufsichtliche Zustimmung zur Vorgehensweise des Bundesamtes für Strahlenschutz zur Umsetzung der Nebenbestimmung 1 der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis zu Endlagerung von radioaktiven Abfällen im Endlager Konrad**, Lüneburg, Brief an das BfS vom 15.03.2011.

/1-2/ **Brennecke, P (Hrsg.): Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle (Endlagerungsbedingungen, Stand: Oktober 2010) -Schachtanlage Konrad-**, Bericht des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) SE-IB-29/08-REV-1, Salzgitter, Stand 11. Januar 2011.

/1-3/ *Steyer, S. (Hrsg.):* **Produktkontrolle radioaktiver Abfälle, radiologische Aspekte- Schachtanlage Konrad-, Stand: Oktober 2010**, Bericht des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) SE-IB-30/08-REV-1, Salzgitter, Oktober 2010.

/1-4/ *Steyer, S. (Hrsg.):* **Produktkontrolle radioaktiver Abfälle, stoffliche Aspekte - Schachtanlage Konrad-, Stand: Oktober 2010**, Interner Arbeitsbericht des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) SE-IB-31/08-REV-1, Salzgitter, Stand 06.12.2010.

/1-5/ *Kettler, J:* **Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfälle,** Schriften des Forschungszentrum Jülich, Reihe Energie & Umwelt Band 82, ISBN 978-3-89336-665-1

/1-6/ E. Mauerhofer, J. Kettler: **Neutronen-Aktivierungs-Analyse mit standardisiertem Probenbehälter zur Bestimmung des Neutronenflusses**, Forschungszentrum Jülich GmbH, WO 2012/010162 A1

Kapitel 2

/2-1/ *Niedersächsisches Umweltministerium:* **Planfeststellungsbeschluss für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerkes Konrad in Salzgitter als Anlage zur Endlagerung fester oder verfestigter radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung**, Hannover, 22. Mai 2002.

/2-2/ *Brennecke, P.; Steyer, S.:* **Endlager Konrad – Bilanzierungsvorschrift für Radionuklide/Radionuklidgruppen und nichtradioaktive schädliche Stoffe**, Fachbereich Sicherheit nukleare Entsorgung des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS), SE-IB-33/09-REV-1, Salzgitter, Stand: 07. Dezember 2010.

/2-3/ Brennecke, P.; Kugel K.; Steyer, S.: **Endlager Konrad - Vorgehensweise zur Umsetzung des wasserrechtlichen Nebenbestimmungen**, Fachbereich Sicherheit nukleare Entsorgung des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS), SE-IB-38/09-REV-1, Salzgitter, Stand: 29. Oktober 2010.

/2-4/ Brennecke, P.; Kugel K.; Steyer, S.: **Endlager Konrad – Stoffliste Stand: Oktober 2012,** Fachbereich Sicherheit nukleare Entsorgung des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS), SE-IB-43/10, Salzgitter, Stand: 29. Oktober 2010.

/2-5/ Brennecke, P.; Kugel K.; Steyer, S.: **Endlager Konrad – Behälterliste Stand: Oktober 2012,** Fachbereich Sicherheit nukleare Entsorgung des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS), SE-IB-44/10, Salzgitter, Stand: 29. Oktober 2010.

/2-6/ **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.

/2-7/ *Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit:* **Information der Bundesregierung mit Schreiben des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit vom 16. Mai 2007**, Drucksache 16/5379, 2007.

/2-8/ Richtlinie zur Kontrolle radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung, die nicht an eine Landessammelstelle abgeliefert werden in der Fassung der Bekanntmachung vom 16. Januar 1989, zuletzt ergänzt am 26. Juni 1898.

/2-9/ *Bundesamt für Strahlenschutz (BfS):* **Abfallbestand am 31.12.2011**, http://www.bfs.de/de/endlager/abfaelle/abfallbestand.html, Stand vom 01.08.2012.

/2-10/ *Bundesamt für Strahlenschutz (BfS):* **Optionenvergleich Asse: Fachliche Bewertung der Stilllegungsoptionen für die Schachtanlage Asse II**, Dok.-Nr. 9A/21400000/MZA/RB/0001/00.

/2-11/ *Mauerhofer E.; Odoj R.:* **Messmethoden zur Charakterisierung radioaktiver Abfälle und zur Freimessung von Reststoffen aus der Stilllegung kerntechnischer Anlagen (MESRAB)**, RWTH-Aachen, Lehrstuhl für Werkstoffchemie, März 2006.

/2-12/ **Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen** (Strahlenschutzverordnung – StrlSchV 9. Auflage, 01. November 2011

/2-13/ *Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB):* **Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 der Strahlenschutzverordnung**, Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus Anlagen oder Einrichtungen, Bundesanzeiger AT 05.09.2012.

/2-14/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB): **Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle,** Stand: 30. September 2010.

/2-15/ International Atomic Energy Agency (IAEA): **Disposal of Radioactive Waste. IAEA Safety Standards Series**, ISSN 1020-525X; no. SSR-5, STI/PUB/1449, Wien, 2011.

/2-16/ Nuclear Energy Agency (NEA): **Post-Closure Safety Case for Geological Repositories**, Organisation for Economic Co-operation and Development (OECD), NEA No. 3679, ISBN 92-64-02075-6, Paris, 2004.

/2-17/ Europäische Union (EU): **RICHTLINIE 2011/70/EURATOM DES RATES über einen Gemeinschaftsrahmen für die verantwortungsvolle und sichere Entsorgung abgebrannter Brennelemente und radioaktiver Abfälle vom 19. Juli 2011,** Amtsblatt der Europäischen Union vom 02.08.2011.

/2-18/ **Gesetz zur Ordnung des Wasserhaushaltes, Wasserhaushaltsgesetz – WHG**, Ausfertigungsdatum 31.07.2009, geltende Fassung seit dem 1. März 2010

/2-19/ **Allgemeine Verwaltungsvorschrift zur Änderung der Verwaltungsvorschrift wassergefährdende Stoffe** vom 27 Juli 2005 (VwVwS), Bundesanzeiger herausgegeben vom Bundesministerium für Justiz am 30 Juli 2005.

/2-20/ **PSI:** - http://www.psi.ch/niag/comparison-to-x-ray

/2-21/ **PSI**: - http://www.psi.ch/niag/what-is-neutron-imaging

/2-22/ NPP OSI: **Radioactive Waste Disposal Acceptance Criteria for the ENDSF**, Revision 1.

/2-23/ **National Report of the Slovak Republic**: Fuel Management and the Safety of Radioactive Waste Managment, April 2003.

/2-24/ Bundesanzeiger: **Gesetz zur Suche und Auswahl eines Standortes für ein Endlager für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle und zur Änderung anderer Gesetze** (Standortauswahlgesetz – StandAG) vom 23. Juli 2013.

/2-25/ Bundesamt für Strahlenschutz: **Ermittlung von Art und Menge chemotoxischer Stoffe in allen Arten radioaktiver Abfälle und Bewertung ihrer Freisetzung im Hinblick auf das Schutzziel des Wasserhaushaltsgesetz dargelegt**, Auftragnehmer Buchheim Engineering, 28. Juni 2005.

Kapitel 3

/3-1/ *Fermi Enrico:* **Radioactivity Induced by Neutron Bombardment**, Nature 757, 1934.

/3-2/ *Havesy G., Levi H.:* Kgl. Danske Videnskap. Selskab Math-fys. 14, 3-34, 1936.

/3-3/ *Lea D. E.:* Nature 133, Seite 24, 1934.

/3-4/ *IAEA:* **Handbook on Nuclear Data for Borehole Logging and Mineral Analysis**, Vienna 1993.

/3-5/ *IAEA:* **Database of Prompt Gamma Rays from Slow Neutron Capture for Elemental Analysis**, IAEA-TECDOC, Vienna 2004.

/3-6/ *IAEA:* **Database of Prompt Gamma Rays from Slow Neutron Capture for Elemental Analysis**, IAEA Library Cataloguing in Publication Data, ISBN 92–0–101306–X, Vienna January 2007.

/3-7/ *Havenith, Kettler, Mauerhofer:* **Zyklische Neutronen-Aktivierung zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfälle**, Compact zur Jahrestagung Kerntechnik 2011, Berlin, Deutschland.

/3-8/ *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.

/3-9/ *J.Dwork,P.L.Hofmann,H.Hürwitz:* E.F.Clancy,Report KAPL-1262, 1955.

/3-10/ *P.F.Zweifel:* Nucleonics 18, page 174, 1960.

/3-11/ *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.

/3-12/ *Degenaar, I. H.:* **Towards a methodology for large-sample prompt-gamma neutron-activation analysis**, (Dissertation); Delft; TU Delft; (2004)

/3-13/ *Schlumberger Ltd.:* **A New Capture and Inelastic Spectroscopy Toll Takes Geochemical Logging to the Next Level**, SPWLA 53rd Qannual Logging Symposium, June 16-20, 2012.

/3-14/ *Schlumberger Ltd.:* **Litho Scanner High-Definition Spectroscopy**, http://www.slb.com/services/characterization/wireline_open_hole/scanner_rock_fluid_character/litho_scanner.aspx, Download spectroscopy workflow,.

/3-15/ *Thermo Electron Corporation (R. Woodward, B. Chuang, K. Gordon, D. Milam) Arch Coal (M. Hardesty):* **Automated Coal Blending with Two Control Parameters at One of Arch Coal's West Virginia Mining Complexes**, International On-Line Coal Analyzer Technical Conference St. Louis, Missouri, 8.-10. November 2004.

/3-16/ *Thermo Fisher Scientific:* http://www.thermoscientific.com.

/3-17/ *Thermo Fisher Scientific (Darrell Leetham):* **Online Stockpile Analysis**, Reprinted from January 2008, World Cement.

/3-18/ *R. Auberg:* **Schutz vor chloridinduzierter Korrosion von Stahlbeton bei Parkhaus- und Tiefgaragen im Bestand und Neubau**, WISSBAU Beratende Ing.-GmbH Essen.

/3-19/ *Naqvi A.A., Nagadi M.M., Al-Amoudi O.S.B:* **Corrosion Study of Concrete Using PGNAA Technique**, Materials Science Forum (Volumes 480 - 481), März 2005

/3-20/ *Naqvi A.A.:* **Non-destructive analysis of chlorine in fly ash cement concrete**, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Mai 2009.

/3-21/ *Naqvi A.A., Nagadi M.M., Al-Amoudi O.S.B:* **Non-destructive evaluation of concrete samples using PGNAA technique**, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 271, No.1 (2007) 151–154, April 2006

/3-22/ *Westinghouse (A. R. Dulloo, B. Petrović, F.H. Ruddy, T.V. Congedo, V.N. Kucukboyaci, J.G. Seidel) Idaho National Engineering and Environmental Laboratory (M.E. McIlwain) The Pennsylvania State University (A. Haghighat):* **PGNAA System for the Assay of RCRA Metals in Mixed Waste**, Proceedings of the Seventh NDA Waste Characterization Conference, Salt Lake City, Utah, 23-25 Mai, 2000, S. 521-539.

/3-23/ *Westinghouse Electric Corp. (A. R. Dulloo, F.H. Ruddy, T.V. Congedo, J.G. Seidel) Lockheed Martin Idaho Technologies (M.E. McIlwain):* **Experimental verification of modeling results for a PGNAA system for nondestructive assay of RCRA metals in drums**, Applied Radiations and Isotopes 53 (2000), S. 499-505.

/3-24/ *Westinghouse Electric Corp. (A. R. Dulloo, F.H. Ruddy, B. Petrović, J.G. Seidel, S. Lee) Idaho National Engineering and Environmental Laboratory (M.E. McIlwain):* **Neutron fluence rate measurements in a PGNAA 208-liter drum assay sytem using silicon carbide detectors**, Nuclear Instruments an Methods in Physics Research B 2012 (2004) S. 400-405.

/3-25/ *World International Property Organization, International Patent Publications Number WO 01/07888 A2, Applicant:* Westinghouse Electric Company LLC, Pittsburgh, PA 15230-0355, Title: **Pulsed Gamma Neutron Activation Analysis (PGNAA) Method and Apparatus for Nondestructive Assay of Containerized Containments**, 01.02.2001.

/3-26/ *Westinghouse Electric Corp.:* **A Pulsed Gamma Neutron Activation Analysis (PGNAA) method provides the nondestructive assay of a homogeneous or a non-homogeneous contaminant, such as a hazardous RCRA metal, in a container, such as a sealed 55 gallon waste drum**, *Patent WO 2001007888 A2*August 2001.

/3-27/ *Ma, Carasco, Perot, Mauerhofer, Kettler, Havenith:* **Prompt gamma neutron activation of toxic elements in radioactive waste packages**, Applied Radiation and Isotopes 70, Jahrgang 2012, Seiten 1261-1263.

Kapitel 4

/4-1/ *Claus Grupen:* **Grundkurs Strahlenschutz**, Praxiswissen für den Umgang mit radioaktiven Stoffen, 3 Auflage, ISBN 3-540-00827-6.

/4-2/ *E. Mauerhofer:* **Internes FZJ-Dokument zur Herleitung der Zeitfaktoren für die Neutronenaktivierungsanalyse**, Juni 2011.

/4-3/ Wirtz K., Beckurts K. H.: **Elementare Neutronenphysik**, Springer Verlag, 1958.

Kapitel 5

/5-1/ *SODERN:* **GENIE16GT – USER MANUAL,** November 2007

/5-2/ *Drucksache des Bundestages*: **Verordnung zur Änderung der Ausfuhrliste der deutschen Bundesregierung**, 13/10745, 20.05.1998.

/5-3/ *A. Bolewski Jr., M. Ciechanowski, A. Dydejczyk, A. Kreft*, Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res. Section. B:, Vol. 237 (2005), p. 602-612

/5-4/ *Edelgraphit GmbH*: **Spezifikation des Graphits EG 1700**

/5-5/ *SGL Carbon S.A.S:* **Specification of Graphite Type NBG 17 and NBG 18, Grade for Nuclear Application**.

/5-6/ C. Pickhardt and J.S. Becker, Fres. J. Anal. Chem. 370 (2001), p. 534.

/5-7/ *IAEA:* **Guidelines for nuclear transfers**, INFCIRC/254/Rev.5/Part 1, Vienna, January 2002.

/5-8/ *László Szentmiklósi:* **Composition of six graphite samples and three rock samples, Nuclear Analysis and Radiography Department**, Centre for Energy Research, Hungarian Academy of Sciences, Budapest, 20.07.2012.

/5-9/ *Zsolt Révay:* **Results of the PGAA Measurements of three CFK Samples und three Cement Samples**, Hungarian Academy of Sciences, Institute of Isotopes, , Budapest, Konkoly-Thege Miklos utca 29-33. 1121 Hungary, 12.07.2010.

/5-10/ *Szentmiklósi, L., Belgya, T., Revay, Zs., Kis, Z.:* **Upgrade of the prompt gamma activation analysis and the neutron-induced prompt gamma spectroscopy facilities at the Budapest research reactor**, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 286, 501–505, 2010.

/5-11/ *H.W.Kraner, R.H. Pehl and E.E. Halles:* **Fast Neutron Radiation Damage of High-Purity Germanium Detectors**, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-22, N1, Page 149, 1975.

/5-12/ *T.W. Raudorf , R.C. Trammel and S. Wagner:* **Performance of Reverse Electrode HPGe Coaxial Detectors After Light Damage by Fast Neutrons**, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-31, N1, Page 253, 1984.

/5-13/ *X-5 MONTE CARLO TEAM:* **A General Monte Carlo N-Particle Transport Code**, Version 5 (Handbuch), Los Alamos National Laboratory, 2005.

/5-14/ Nargolwalla & Przybylowicz: **Activation Analysis with Neutron Generators**, John Wley & Sons, ISBN 0-471-63031-4, 1973.

/5-15/ *Mauerhofer, Havenith, Carascoc, Payanc, Kettler, Mac, Perot:* **Quantitative comparison between PGNAA measurements and MCNP calculations in view of the characterization of radioactive wastes in Germany and France**, 24. Seminar Aktivierungsanalyse und Gammaspektroskopie (SAAGAS), Februar 2013, Technischen Universität München

/5-16/ *Mauerhofer, Havenith, Carasco, Payan, Kettler, Ma, Perot:* **Quantitative comparison between PGNAA measurements and MCNP calculations in view of the characterization of radioactive wastes in Germany and France**, Compact for CAARI Conference August 2012 - 22nd International Conference on the Application of Accelerators in Research and Industry, Fort Worth, Texas, USA

/5-17/ *Havenith, Kettler, Mauerhofer:* **MEDINA-Animation**

/5-18/ Los Alamos National Laboratory *und weitere:* **ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data,** Nuclear Data Sheets, Volume 112, Issue 12, Pages 2887–2996, December 2011.

Kapitel 7

/7-1/ DIN IEC 60973, **Prüfverfahren für Germanium-Gammastrahlungs-Detektoren**, DIN IEC 973, April 1993 Identisch mit IEC 60973 und IEEE 325

/7-2/ *Idahao National Engineering & Environmental Laboratory:* **Gamma-Ray Spectrum Catalogue**, Fourth Edition, Electronic Version with updated data and decay schemes, September 1998.

/7-3/ *Dipl.-Ing. Dr. mont. Simone Waltritsch, Treibacher Industrie AG:* **Die Seltenen Erden und ihre Anwendungen***, Treibach Althofen, Österreich, BHM Berg- und Hüttenmännische Monatshefte Springer Verlag, 30. Dezember 2009.*

/7-4/ *Gehrke, Davidson:* **Acquisition of quality γ-ray spectra with HPGe spectrometers**, Idahao National Engineering & Environmental Laboratory, Applied Radiation and Isotopes 62 (479-499), 2005.

/7-5/ *P. Bossew:* **A very long-term HPGe-background gamma spectrum, Department of Physics an Biophysics**, University of Salzburg. Applied Radiation and Isotopes 62 (635-644), 2005.

Kapitel 8

/8-1/ **Croff, A. G.** ORIGEN2 – **A Revised and Updated Version of the Oak Ridge IsotopeGeneration and Depletion Code ORNL-5621**, Oak Ridge National Laboratory, 1980.

Kapitel 9

/9-1/ http://www.lenntech.de/, Daten entnommen am 05.04.2013

/9-2/ Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung- StrlSchV), 20.07.2001.

/9-3/ *Nikhil Vittal Shetty:* **Study of Particle Transport in a High Power Spallation Target for an Accelerator-Driven Transmutation System**, RWTH Aachen, 2013.

Kapitel 11

/11-1/ *A. Heinrich:* **Development of an intelligent software for the identifcation and quantifcation of mass fractions based on the analysis of gamma-ray spectra,** Master Thesis, University Maastricht, June 2012.

/11-2/ E. Mauerhofer: **Private Mitteilung über ein mathematisches Modell zur Abbildung des thermischen Neutronenflusses in der Abfallmatrix**, März 2013.

/11-3/ Bai, Mauerhofer, Wang, Odoj: **An improved method for the non-destructive characterization of radioactive waste by gamma scanning**, Applied Radiation an Isotopes 67, 2009.

Kapitel 12

/12-1/ R. *Michel:* ***Anwendung von Erkennungs-, Nachweis- und Vertrauensgrenzen in Kernstrahlungsmessungen und Radioanalytik**, Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie Universität Hannover, Hannover.*

Kapitel 13

/13-1/ *SODERN:* ***Private Mitteilung über die Synchronisation von mehreren Neutronengeneratoren**, April 2014.*

Band / Volume 235
Untersuchungen zur Abtrennung, Konversion und Transmutation von langlebigen Radionukliden
Ein Beitrag zur fortschrittlichen Entsorgung von hochradioaktiven Abfällen
G. Modolo (2014), 291 pp
ISBN: 978-3-95806-005-0

Band / Volume 236
Keramische Membranen für die H_2-Abtrennung in CO-Shift-Reaktoren
D. van Holt (2014), IV, 169 pp
ISBN: 978-3-95806-007-4

Band / Volume 237
Entwicklung von porösen Silica-Membranen zur CO_2-Abtrennung aus dem Rauchgas fossil befeuerter Kraftwerke
J. S. Eiberger (2014), II, 163 pp
ISBN: 978-3-95806-008-1

Band / Volume 238
Development of a highly sensitive and versatile mass spectrometer system for laboratory and atmospheric measurements
S. Albrecht (2014), iv, 171 pp
ISBN: 978-3-95806-009-8

Band / Volume 239
High Temperature Corrosion of Alloys and Coatings in Gas-Turbines Fired with Hydrogen-Rich Syngas Fuels
W. Nowak (2014), 201 pp
ISBN: 978-3-95806-012-8

Band / Volume 240
Einfluss neuer Membranmaterialien auf Herstellung und Betrieb von Direktmethanol-Brennstoffzellen
S. Hürter (2014), V, 164 pp
ISBN: 978-3-95806-013-5

Band / Volume 241
Spannungsinduziertes Versagen in Hochtemperaturschichtsystemen
C. Nordhorn (2014), v, 118 pp
ISBN: 978-3-95806-016-6

Band / Volume 242
Änderungsdetektion digitaler Fernerkundungsdaten mittels objekt-basierter Bildanalyse
C. Listner (2014), 176 pp
ISBN: 978-3-95806-017-3

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

Band / Volume 243
Räumlich hoch aufgelöste Modellierung des Spaltprodukt-verhaltens in einem HTR-Core mit kugelförmigen oder prismatischen Brennelementen
A. Xhonneux (2014), viii, 239 pp
ISBN: 978-3-95806-020-3

Band / Volume 244
Effects of Cercospora leaf spot disease on sugar beet genotypes with contrasting disease susceptibility
S. Schmittgen (2015), 121 pp
ISBN: 978-3-95806-021-0

Band / Volume 245
Light scattering and trapping in thin film silicon solar cells with an n-i-p configuration
W. Böttler (2015), 132 pp
ISBN: 978-3-95806-023-4

Band / Volume 246
Nanostructured Si-alloys for silicon solar cells
K. Ding (2015), 210 pp
ISBN: 978-3-95806-024-1

Band / Volume 247
Electrochemical Texturing and Deposition of Transparent Conductive Oxide Layers for the Application in Silicon Thin-Film Solar Cells
J.-P. Becker (2015), ix, 156, XXIV pp
ISBN: 978-3-95806-027-2

Band / Volume 248
Stoffliche Charakterisierung radioaktiver Abfallprodukte durch ein Multi-Element-Analyseverfahren basierend auf der instrumentellen Neutronen-Aktivierungs-Analyse – MEDINA –
A. W. Havenith (2015), 311 pp
ISBN: 978-3-95806-033-3

Weitere ***Schriften des Verlags im Forschungszentrum Jülich*** unter
http://wwwzb1.fz-juelich.de/verlagextern1/index.asp

Energie & Umwelt
Energy & Environment

248

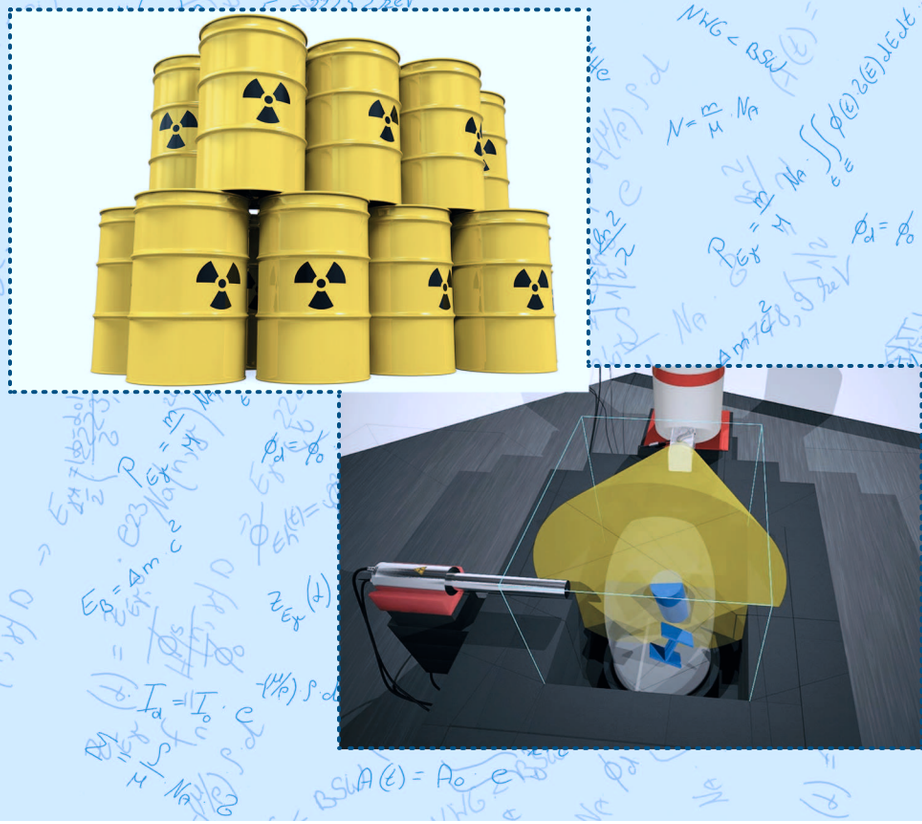
Charakterisierung radioaktiver Abfallprodukte

Andreas Wilhelm Havenith

Mitglied der Helmholtz-Gemeinschaft

Stoffliche Charakterisierung radioaktiver Abfallprodukte durch ein Multi-Element-Analyseverfahren basierend auf der instrumentellen Neutronen-Aktivierungs-Analyse – MEDINA –

Andreas Wilhelm Havenith



Energie & Umwelt /
Energy & Environment
Band / Volume 248
ISBN 978-3-95806-033-3

JÜLICH
FORSCHUNGSZENTRUM

Energie & Umwelt /
Energy & Environment
Band / Volume 248
ISBN 978-3-95806-033-3

JÜLICH
FORSCHUNGSZENTRUM