



Universität Hamburg

DER FORSCHUNG | DER LEHRE | DER BILDUNG



Monte Carlo Simulationen der Gammaspektren von Plutonium und ihre systematische Untersuchung als Funktion der Isotopenzusammensetzung

Diplomarbeit

Universität Hamburg
Fachbereich Physik
Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum für Naturwissenschaft
und Friedensforschung (ZNF)

von

Arne Schmüser

Hamburg, 28. Mai 2014



Referenten

Referent: Prof. Dr. Gerald Kirchner

Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum
für Naturwissenschaft und Friedensforschung
Universität Hamburg

Korreferent: Prof. Dr. Götz Neuneck

Institut für Friedensforschung und Sicherheitspolitik
an der Universität Hamburg (IFSH)

Erklärung

Hiermit versichere ich, die vorliegende Diplomarbeit selbstständig und nur unter
Zuhilfenahme der angegebenen Quellen und Hilfsmittel verfasst zu haben.

Mit einer Veröffentlichung dieser Arbeit erkläre ich mich einverstanden.

Arne Schmäuser
28. Mai 2014

Abstract

For the verification of nuclear dismantlement in future arms control treaties, the authentication of the warhead is essential. This could be done by analyzing the radiation emitted during the natural decay and fission of radioactive isotopes.

Gamma spectrometry in particular can be used to determine the isotopic composition of plutonium. The knowledge of the isotopic composition is necessary to distinguish weapons-grade plutonium and plutonium from spent nuclear fuel.

To evaluate the feasibility of determining the isotopic composition by analyzing a gamma spectrum, simulations based on Monte Carlo methods were used, as there were no sufficient measurement possibilities.

For this purpose, simulation results are compared with a measurement of small amounts of weapons-grade plutonium. Because of great accordance between the measurement and simulations, the code MCNP5 was used to simulate plutonium samples from spent fuel of different commercial reactors.

These gamma spectra are distinguishable from the spectrum of weapons-grade plutonium, mainly due to more radiation from ^{238}Pu . To calculate the ratio of various plutonium isotopes, areas of characteristic peaks were compared. The influence of effects such as self-shielding is negligible if the peak energy is similar. Overlaps can be separated by peak-fitting with analysis software like *OriginPro*.

Information about the plutonium characteristics can be extracted from two different energy regions: Between 129 keV and 155 keV , the ratio ^{239}Pu to ^{238}Pu to ^{241}Pu can be calculated with small uncertainties. The isotopic ratio ^{238}Pu to ^{239}Pu to ^{240}Pu can be determined between 640 keV and 760 keV .

A successful isotopic composition determination of plutonium is feasible. The ratio of at least three isotopes must be known, to reach acceptable uncertainties for spent fuel items. In contrast, the ratio of two isotopes suffice to determine the composition of weapons-grade plutonium.

Zusammenfassung

Für die Verifikation von Zerlegung von nuklearen Sprengköpfen in zukünftigen Rüstungskontrollverträgen ist die Authentifizierung dieser Gefechtsköpfe entscheidend. Diese könnte durchgeführt werden, indem die Strahlung analysiert wird, die durch Zerfall und Spaltung von radioaktiven Isotopen emittiert wird.

Speziell Gammaspektrometrie kann verwendet werden, um die Isotopenzusammensetzung von Plutonium zu bestimmen. Das Wissen über die Isotopenzusammensetzung ist notwendig, um zwischen waffenfähigen Plutonium und Plutonium aus abgebrannten Brennelementen zu unterscheiden.

Um die Möglichkeiten für die Bestimmung der Isotopenzusammensetzung durch die Analyse eines Gammaspektrums zu beurteilen, sind Simulationen auf Basis der Monte-Carlo-Methode verwendet worden, da keine ausreichenden Messmöglichkeiten gegeben sind.

Zu diesem Zweck wurden Simulationsergebnisse mit einer Messung von geringer Menge waffenfähigen Plutoniums verglichen. Wegen deutlicher Übereinstimmung von Messung und Simulationen, wurde das Computerprogramm MCNP5 verwendet, um Plutoniumproben aus abgebrannten Brennelementen von verschiedenen kommerziellen Reaktoren zu simulieren.

Diese Gammaspektren unterscheiden sich deutlich vom Spektrum waffenfähigen Plutoniums, vor allem wegen der erhöhten Strahlung von ^{238}Pu . Um das Verhältnis verschiedener Plutoniumisotope zueinander zu berechnen, wurden die Flächeninhalte charakteristischer Linien verglichen. Der Einfluss von Effekten wie beispielsweise Selbstabschirmung sind vernachlässigbar, wenn die Linienenergie ähnlich ist. Überlagerungen von Linien können getrennt werden, indem Ausgleichsfunktionen mit Analyse-Software berechnet werden, z.B. mit *OriginPro*.

Informationen über die Charakteristika des Plutoniums können aus zwei verschiedenen Energiebereichen gewonnen werden: Zwischen 129 keV und 155 keV kann das Verhältnis von ^{239}Pu zu ^{238}Pu zu ^{241}Pu berechnet werden. Das Isotopenverhältnis ^{238}Pu zu ^{239}Pu zu ^{240}Pu kann zwischen 640 keV und 760 keV bestimmt werden.

Eine erfolgreiche Bestimmung der Isotopenzusammensetzung des Plutoniums ist möglich. Das Verhältnis von mindestens drei Isotopen zueinander muss bekannt sein, um die Plutonium aus abgebranntem Kernbrennstoff genau genug zu identifizieren. Im Gegensatz dazu ist die Kenntnis über das Verhältnis zweier Isotopen ausreichend um die Zusammensetzung von waffenfähigem Plutonium zu bestimmen.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Physikalische Grundlagen	3
2.1. Radioaktiver Zerfall	3
2.1.1. Gammastrahlung	4
2.2. Wechselwirkung von Gammastrahlung mit Materie	5
2.2.1. Photoelektrischer Effekt	6
2.2.2. Comptoneffekt	7
2.2.3. Paarbildung	8
2.2.4. Weitere Effekte	9
2.3. Folgeprozesse der Wechselwirkungen von Photonen mit Materie	9
2.4. Detektion von Gammastrahlung	10
2.4.1. Halbleiterdetektoren aus Germanium	11
2.4.2. Charakteristika eines Gammaskpektrums	12
3. Monte Carlo N-Particle Code	15
3.1. Monte Carlo Methode	15
3.2. Simulierbare physikalische Prozesse	16
3.3. Eingabedaten	16
3.3.1. Zellen	17
3.3.2. Flächen	17
3.3.3. Spezifikationen	17
3.4. Vergleich: Simulationsergebnis und Messung	18
4. Simulationsaufbau	20
4.1. Grundlagen	20
4.1.1. Die Proben	20
4.1.2. Der Detektor	20
4.2. Verwendete Eingabedaten	22
4.2.1. Materialspezifikationen	22
4.2.2. Berechnung der Strahlung	22
4.2.3. Optimierung der Rechenzeit / Varianzreduktion	23

5. Simulationsergebnisse	30
5.1. Isotopenidentifikation	30
5.1.1. Waffenfähiges Plutonium	32
5.1.2. Plutonium aus kommerziellen Leistungsreaktoren	38
5.1.3. Zusammenfassung	41
5.2. Bestimmung des Isotopenvektors	43
5.2.1. Waffenfähiges Plutonium	46
5.2.2. Plutonium aus kommerziellen Leistungsreaktoren	49
5.2.3. Zusammenfassung	55
6. Fazit	56
A. Anhänge	58
A.1. Fehlerfortpflanzung	58
A.2. Simulation	59
A.3. Isotopenidentifikation	62

Abbildungsverzeichnis

2.1.	Zerfallsschema von ^{60}Co [Ind07].	5
2.2.	Gemessene Massenschwächungskoeffizienten in Germanium und Blei. Die verwendete Daten stammen aus [JHH].	6
2.3.	Die linearen Abschwächungskoeffizienten des Photoeffekts μ_τ , des Comptoneffektes μ_σ und der Paarbildung μ_χ in Germanium [KD88].	7
2.4.	Illustration des Comptoneffekts.	8
2.5.	Energieniveaus eines Nickelatoms mit entsprechenden Bindungsenergien der Elektronen (in keV).	10
2.6.	Gammaspektrum einer ^{60}Co Probe[Wei13].	13
2.7.	Einfluss der Detektorelektronik auf die Linienbreite eines Spektrums.	14
3.1.	Vergleich von Messung und Simulation im Energiebereich von $400 keV$ bis $600 keV$ mit gekennzeichneten Summationspeaks.	19
4.1.	Schematische Zeichnung eines Detektorkopfes. Mit modifizierter Beschriftung entnommen aus [Can11].	21
4.2.	Vergleich der Messung [Wei13] mit einem Simulationsergebnis; Energiebereich $420 keV$ bis $600 keV$	23
4.3.	Beispiele für Varianzreduktion. Entnommen aus [JKS01], modifiziert mit dem jeweiligem Gewicht (ω) der gemessenen Photonen.	25
4.4.	Auswirkungen von Gewichtungseinstellungen auf das Simulationsergebnis im Energiebereich $375 keV$ bis $450 keV$	26
4.5.	Querschnitt des verwendeten Simulationsaufbaus.	29
5.1.	Ausschnitt des Simulationsergebnisses für waffenfähiges Plutonium mit einer Simulationszeit von $900 min$. Energiebereich $500 keV$ bis $700 keV$	31
5.2.	Gammaspektrum von waffenfähigem Plutonium, Energiebereich $123 keV$ bis $900 keV$	32
5.3.	Gammaspektrum von waffenfähigem Plutonium im Energiebereich von $123 keV$ bis $255 keV$	33
5.4.	Spektrum von waffenfähigem Plutonium im Energiebereich von $225 keV$ bis $575 keV$	34
5.5.	Spektrum von waffenfähigem Plutonium im Energiebereich von $575 keV$ bis $750 keV$. Nicht beschriftete Linien stammen vom ^{239}Pu -Zerfall.	36

5.6.	Vergleich der Spektren von waffenfähigem Plutonium und Plutonium aus einem Leichtwasserreaktor (LWR); Energiebereich von 123 <i>keV</i> bis 900 <i>keV</i> , wie Abb. 5.2.	38
5.7.	Spektrum von Plutonium aus einem Leichtwasserreaktor und von Plutonium aus einem mit MOX-Brennstoff betriebenen Druckwasserreaktor; Energiebereich 123 <i>keV</i> bis 225 <i>keV</i> .	39
5.8.	Vergleich der Spektren von waffenfähigem Plutonium und Plutonium aus einem Leichtwasserreaktor (LWR); Energiebereich von 225 <i>keV</i> bis 575 <i>keV</i> .	40
5.9.	Gammaspektrum von Plutonium aus einem Leichtwasserreaktor im Energiebereich von 575 <i>keV</i> bis 900 <i>keV</i> .	41
5.10.	Vergleich der verschiedenen Simulationsergebnisse im Energiebereich von 123 <i>keV</i> bis 225 <i>keV</i> . Markiert sind die Beiträge von ²⁴⁰ Pu.	44
5.11.	Energiebereich von 145 <i>keV</i> bis 156 <i>keV</i> als Balkendiagramm, mit jeweils angepasster Gauß-Kurve.	46
5.12.	Gammaspektrum von waffenfähigem Plutonium. Energiebereich 620 <i>keV</i> bis 700 <i>keV</i> . Die farblichen Markierungen geben einen Eindruck der für die Isotopenzusammensetzung berechneten Flächen.	47
5.13.	Ausschnitt des Spektrums von LWR-Plutonium im Energiebereich zwischen 620 <i>keV</i> und 780 <i>keV</i> . Für die Bestimmung des Isotopenvektors verwendete Linien sind beschriftet.	49

Tabellenverzeichnis

4.1.	Zur Erstellung von Referenzspektren verwendete Isotopenvektoren für waffenfähiges Plutonium und Plutonium aus verschiedenen, abgebrannten Brennelementen.	20
4.2.	Spezifische Aktivitäten A_{iso} der relevanten Plutoniumisotope.	22
4.3.	Anzahl simulierter Photonen pro Sekunde und Summe der Photonen, die in 900 min Simulationszeit Energie im Detektor deponieren; sowohl mit als auch ohne Berechnung der Elektronentransporte.	24
4.4.	Auswirkungen von Gewichtungseinstellungen auf die Anzahl simulierter Teilchen pro Sekunde und auf die Summe der detektierten Teilchen.	27
4.5.	Effekte der Begrenzung der Mindestenergie auf 123 keV und der Vergleich der Beiträge der oberen und unteren Kugelschalenhälfte, Referenzmasse 4kg.	28
4.6.	Effekte der Begrenzung der Mindestenergie auf 123 keV und der Vergleich der Beiträge der oberen und unteren Kugelschalenhälfte, Referenzmasse 2kg.	29
5.1.	Gammalinien des Spektrums von waffenfähigem Plutonium im Energiebereich von 123 keV bis 225 keV mit dazugehörigen P_{MCNP} und Literaturwerten aus [MC11].	33
5.2.	Exemplarische Gammalinien des Spektrums von waffenfähigem Plutonium im Energiebereich von 225 keV bis 575 keV.	35
5.3.	Identifizierte Linien des Spektrums von waffenfähigem Plutonium im Energiebereich von 575 keV bis 750 keV.	37
5.4.	Gammalinien des Spektrums von LWR-Plutonium im Energiebereich von 123 keV bis 170 keV.	39
5.5.	Gammalinien des Spektrums von LWR-Plutonium im Energiebereich von 575 keV bis 900 keV.	42
5.6.	Daten aus [MC11] für Gammalinien, die in dieser Arbeit zur Bestimmung der Isotopenvektoren verwendet wurden.	45
5.7.	Aus dem Spektrum von waffenfähigem Plutonium bestimmte Flächeninhalte für je zwei Linien von ^{239}Pu und ^{240}Pu .	47
5.8.	Aus dem Spektrum bestimmter Isotopenvektor für waffenfähiges Plutonium.	48
5.9.	Die aus dem Spektrum von waffenfähigem Plutonium mit OrigionPro ermittelten Flächeninhalte für je zwei Linien von ^{239}Pu und ^{240}Pu .	48
5.10.	Aus dem mit OrigionPro analysiertem Spektrum bestimmter Isotopenvektor für waffenfähiges Plutonium.	48

5.11. Aus dem Spektrum berechnete Anzahl der Gesamtpulse für Gammalinien von Plutonium aus einem Leichtwasserreaktor.	50
5.12. Isotopenverhältnis ^{239}Pu zu ^{240}Pu für LWR-Plutonium.	50
5.13. Isotopenverhältnis ^{241}Pu zu ^{238}Pu für LWR-Plutonium.	50
5.14. Isotopenverhältnis ^{239}Pu zu ^{238}Pu für LWR-Plutonium. Δ steht für die ^{238}Pu -Linie bei 152 keV	50
5.15. Mit OrigionPro ermittelte Ergebnisse der Flächeninhalte und das hieraus berechnete Isotopenverhältnis von ^{239}Pu zu ^{240}Pu aus dem Spektrum von Plutonium aus abgebranntem UO_2 Brennstoff.	51
5.16. Flächeninhalte des Spektrums von Plutonium aus abgebranntem MOX-Brennstoff, der in einem Druckwasserreaktor verwendet wurde.	52
5.17. Isotopenverhältnis ^{239}Pu zu ^{240}Pu für Plutonium aus abgebranntem MOX-Brennstoff, das in einem Druckwasserreaktor eingesetzt wurde.	52
5.18. Isotopenverhältnis ^{241}Pu zu ^{238}Pu für Plutonium aus abgebranntem MOX-Brennstoff, das in einem Druckwasserreaktor eingesetzt wurde.	52
5.19. Isotopenverhältnis ^{239}Pu zu ^{238}Pu für Plutonium aus abgebranntem MOX-Brennstoff, das in einem einem Druckwasserreaktor eingesetzt wurde. Δ steht für die ^{238}Pu -Linie bei 152 keV	52
5.20. Aus dem Spektrum von Plutonium aus dem Kern eines schnellen Brütters berechnete Flächeninhalte.	53
5.21. Isotopenverhältnis ^{239}Pu zu ^{240}Pu für Plutonium aus dem Kern eines schnellen Brütters.	54
5.22. Isotopenverhältnis ^{241}Pu zu ^{238}Pu für Plutonium aus dem Kern eines schnellen Brütters.	54
5.23. Isotopenverhältnis ^{239}Pu zu ^{238}Pu für Plutonium aus abgebranntem MOX-Brennelement, das in einem schnellen Brüter eingesetzt wurde. Δ steht für die ^{238}Pu -Linie bei 152 keV	54

1. Einleitung

Radioaktive Materialien können anhand ihrer Strahlung detektiert werden. Um den möglichen Verwendungszweck eines Fundes festzustellen, reicht eine Bestimmung der vorhandenen Elemente häufig nicht aus. So kann Plutonium sowohl zur Energiegewinnung (in Kernkraftwerken oder Isotopenbatterien) als auch zum Bau einer Kernwaffe verwendet werden. Die spezifische Isotopenzusammensetzung, auch Isotopenvektor genannt, ist ausschlaggebend.

Aufgrund seiner physikalischen Eigenschaften eignet sich vor allem ^{239}Pu für Kernwaffen. Andere Isotope wie ^{240}Pu und ^{241}Pu weisen eine höhere Spontanspaltrate und/oder eine höhere spezifische Aktivität auf. Hierdurch steigt das Risiko einer Frühzündung und einer damit verbundenen starken Reduzierung der Sprengkraft.

Eine Möglichkeit, den Plutoniumisotopenvektor zu bestimmen ohne das zu untersuchende Material teilweise zu zerstören (was z.B. bei der Massenspektrometrie notwendig ist), bietet die Gammaspektrometrie mit hochauflösenden Germaniumdetektoren. Gammastrahlung erzeugt im gekühltem Germanium-Halbleiter-Kristall freie Ladungsträger, die zu Elektroden driften und gemessen werden. Das Signal wird verstärkt und mit einem Vielkanalanalysator wird aus den elektrischen Impulsen das Spektrum gewonnen, das i.d.R. isotopentypische Linien aufweist.

Plutonium entsteht fast ausschließlich in Brennelementen von Kernkraftwerken. Neutroneneinfang und anschließende β^- -Zerfälle erzeugen ^{239}Pu aus ^{238}U . Durch weiteren Neutroneneinfang entstehen die schwereren Plutoniumisotope. ^{238}Pu entsteht deutlich seltener, da es durch mehrfachen Einfang von Neutronen aus ^{235}U gebildet wird. Der Plutoniumisotopenvektor eines Brennelementes ist abhängig vom Reaktortyp und dem Abbrand. Wird ein Kernreaktor kommerziell betrieben, sind im radioaktivem Abfall alle Plutoniumisotope von ^{238}Pu bis ^{242}Pu zu finden [Kir85]. Für waffenfähiges Plutonium ist ein geringer Abbrand entscheidend. Ein messbarer Anteil von ^{240}Pu ist jedoch nicht zu vermeiden.

Die Authentifizierung von Kernwaffen kann für zukünftige Rüstungskontrollverträge entscheidende Bedeutung haben. Im Rahmen vertrauensbildender Maßnahmen wurde 1989 das Gammaspektrum eines auf Uran basierenden atomaren Sprengkopfes gemessen und 1990 von Steve Fetter und Frank von Hippel veröffentlicht [SF90a]. Aus Gründen der Geheimhaltung sensibler Informationen wurde seither jedoch keine weitere Messung der Gammastrahlung von Kernwaffen publiziert.¹

Um die Verbreitung sensibler Daten zu verhindern, könnten Messergebnisse durch eine Informationsbarriere geschützt werden. Die *UK-Norway Initiative* arbeitet an einem Verfahren, wie waffenfähiges Plutonium mit Gammaspektrometrie hinter einer Informationsbarriere automatisiert identifiziert werden kann [All13].

Auch am Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum für Naturwissenschaft und Friedensforschung (ZNF) werden die Möglichkeiten zur Kernwaffenauthentifizierung erforscht [MG11].

Im Rahmen dieses Forschungsprojekts hat Martin Weil für seine Diplomarbeit das Gammaspektrum einer geringen Menge waffenfähigen Plutoniums gemessen [Wei13]. Diese Messung wird in der hier vorliegenden Arbeit verwendet, um die Qualität von Monte Carlo Simulationen zu bestimmen.

¹U.a. mit dem Vertrag über die Nichtverbreitung von Kernwaffen (NVV) soll verhindert werden, dass Nichtkernwaffenstaaten die Möglichkeit bekommen, in den Besitz von Kernwaffen zu gelangen (Artikel I & II, NVV).

In dieser Arbeit wird untersucht, wie mit ausschließlich gammaspektrometrischer Analyse der Plutoniumisotopenvektor von waffenfähigem Plutonium und von Plutonium aus abgebrannten Brennelementen bestimmt werden kann. Eine besondere Aufmerksamkeit liegt in der Identifizierbarkeit von waffenfähigem Plutonium. Die untersuchten Gammaskpektren sind Ergebnisse von Monte Carlo Simulationen.

Im folgenden Kapitel 2 werden die physikalischen Vorgänge erläutert, die zu einem Gammaskpektrum führen. Die Entstehung der Gammastrahlung und die möglichen Wechselwirkungen von Gammaquanten mit Materie sind hierfür relevant. Anschließend wird erklärt, wie durch diese Wechselwirkungen die Vermessung von Gammastrahlung mit Halbleiterdetektoren möglich ist.

In Kapitel 3 wird dargelegt, wie die Wechselwirkungen von Strahlung mit Materie mit Hilfe der Monte Carlo Methode simuliert werden können. Schwerpunkte dieses Kapitels bilden die Funktionsweise und die Verwendungsmöglichkeiten der Software MCNP².

In Kapitel 4 geht es um die Eingabedaten für die Simulationssoftware. Es wird beschrieben, welcher Messaufbau und welche Plutoniumzusammensetzungen simuliert werden und in wieweit die Simulationszeit optimiert werden kann.

In Kapitel 5 werden die Simulationsergebnisse analysiert. Es wird gezeigt, welche Isotope identifiziert werden können und welche Informationen des Isotopenvektors aus den Gammaskpektren gewonnen werden können.

Kapitel 6 bildet mit einer Zusammenfassung der Erkenntnisse den Abschluss der Arbeit.

²Monte Carlo N-Particle Code

2. Physikalische Grundlagen

Radioaktives Material kann durch Messungen der emittierten Strahlung identifiziert werden. Die Bestimmung vorhandener Isotope ist mit Gammaspektrometrie möglich, da Gammastrahlung *charakteristisch* ist. Um ein Gammaspektrum richtig analysieren zu können, ist das Verständnis der Wechselwirkungen von Photonen mit Materie unerlässlich.

Die wesentlichen Wechselwirkungen und die Entstehung von Gammastrahlung werden in diesem Kapitel erläutert.

2.1. Radioaktiver Zerfall

Radioaktiver Zerfall bezeichnet die spontane Umwandlung eines Atomkerns, bei dem ionisierende Strahlung emittiert wird. Solche instabilen Kerne werden als Radionuklid bezeichnet. Zum einen gibt es *Kernzerfälle*, bei denen die Kernzusammensetzung verändert wird. Die entstehenden Nuklide werden als Tochterkerne charakterisiert. Darüber hinaus gibt es *Zerfälle angeregter Kernzustände*. Bei diesen Zerfällen bleibt das chemische Element immer erhalten. Die Aktivität A eines radioaktiven Isotops ist - unabhängig von der Zerfallsart - festgelegt als Anzahl der Zerfälle pro Zeit. Sie ist proportional zur Anzahl der vorhandenen Radionuklide N :

$$A = -\frac{dN}{dt} = \lambda \cdot N \quad (2.1)$$

Die SI Einheit der Aktivität ist Becquerel (1 Bq = 1 Zerfall/s). λ wird Zerfallskonstante genannt. Sie beschreibt die Zerfallswahrscheinlichkeit eines Kerns pro Zeiteinheit und hängt mit der Halbwertszeit über $T_{1/2} = \ln(2)/\lambda$ zusammen. Die Halbwertszeit $T_{1/2}$ ist die Zeit, nach der die Aktivität auf die Hälfte gesunken ist.

Die Aktivität zu einem beliebigen Zeitpunkt t ist bestimmt durch die Startaktivität A_0 :

$$A(t) = \lambda \cdot N(t) = \lambda \cdot N_0 e^{-\lambda t} = A_0 \cdot e^{-\lambda t}, \text{ mit } N_0 = N(t=0). \quad (2.2)$$

Mit der Atommasse $m [u]$ und der Avogadro-Konstanten³ N_A lässt sich die spezifische Aktivität für ein Gramm jedes Isotops berechnen:

$$A_{iso} = \frac{\ln(2) N_A}{T_{1/2} m} \quad (2.3)$$

Wie die Aktivität gemessen werden kann, ist abhängig von der Strahlung und somit von der Art des Zerfalls. In der Regel wird α -, β - oder γ -Strahlung emittiert. Häufig gibt es mehrere Möglichkeiten, wie ein Kern zerfallen bzw. in den Grundzustand übergehen kann. Die Wahrscheinlichkeitsverteilungen der unterschiedlichen Zerfallsmöglichkeiten sind seit den 1940er Jahren vermessen und katalogisiert worden, zum Beispiel in [LSB78] und in [MC11].

³ $N_A = 6,02214129(27) \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$

Kernzerfälle

Nur bestimmte Kombinationen von Nukleonen bilden einen stabilen Kern. Besteht ein Protonen- oder Neutronenüberschuss, kann sich die Kernzusammensetzung spontan ändern. Ein Neutron kann in ein Proton, ein Elektron und ein Elektronantineutrino zerfallen. Dies wird β^- -Zerfall genannt, weil der Strom negativ geladener Elektronen gemessen wird. Bei einem β^+ -Zerfall zerfällt ein Proton - im Kern - in ein Neutron, ein Positron und ein Elektronneutrino. Ein weiterer Prozess zum Umwandeln eines Protons in ein Neutron ist der Elektroneneinfang. Ein Elektron aus der Atomhülle und ein Proton aus dem Atomkern kombinieren zu einem Neutron und einem Elektronneutrino.

Große Kerne (Massenzahl >150) können in zwei oder mehrere leichtere Kerne zerfallen. Hierbei bleibt die Anzahl der Protonen und der Neutronen erhalten. Gebundene Systeme werden häufiger emittiert als einzelne Nukleonen, weil die Bindungsenergie des Systems zusätzlich frei wird. Gleichzeitig ist die Wahrscheinlichkeit, dass sich ein System aus vielen Nukleonen im Kern bildet, sehr klein. Aus diesen Gründen kommt es fast ausschließlich zur Abspaltung von α -Teilchen, zum sogenannten α -Zerfall: Das Ausgangsnuklid zerfällt in zwei Teile, wobei das eine Tochternuklid ein ${}^4\text{He}$ Kern ist.⁴

Detaillierte Beschreibungen zu Kernzerfällen findet man u.a. in [PRSZ09], [KD88] und [Kno89]

2.1.1. Gammastrahlung

Gammastrahlung entsteht beim Zerfall angeregter Kernzustände. Im Gegensatz zu anderer Strahlung radioaktiver Substanzen besteht sie nicht aus Teilchen, sondern aus hochenergetischen Photonen, also Lichtquanten mit der Ruhemasse $m=0$ und der Energie

$$E = h\nu = hc/\Lambda. \quad (2.4)$$

Hierbei ist ν die Frequenz (in Hz), Λ die Wellenlänge (in m), h das Plancksche Wirkungsquantum und c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum.⁵ Typisch sind Energien zwischen einigen Dutzend keV und einigen MeV .

Emission von Gammastrahlung ist eine häufig auftretende Begleiterscheinung des α - oder β -Zerfalls. Häufig befindet sich der Tochterkern in einem angeregten Zustand. Beim Übergang in einen niedrigeren Zustand wird Energie frei. Diese wird meistens in Form von Gammastrahlung abgegeben.⁶ Die Übergänge haben in der Regel eine Zerfallszeit im Bereich von $10^{-15}s$ bis $10^{-12}s$. Sie ist somit groß genug, dass klare Energieniveaus existieren. Die Anzahl und die Struktur der Energieniveaus ist isotopentypisch. Deswegen kann mit einer Messung der Energie der emittierten Photonen das radioaktive Isotop identifiziert werden.

Die Anzahl der Photonen pro Zeit ist in der Regel durch die Halbwertszeit des Mutternuklids bestimmt, da diese häufig deutlich größer ist als die Zerfallszeit der angeregten Zustände. Die Wellenlänge der Gammastrahlung ist nur von den Übergängen des Tochternuklids abhängig. Weiterführende Literatur sind [Kno89] und [KD88].

⁴Die Kombination von 2 Protonen und 2 Neutronen besitzt vergleichsweise viel Bindungsenergie pro Nukleon.

⁵ $h = 4,135 \cdot 10^{-15} eVs$; $c = 2,998 \cdot 10^8 m/s$

⁶Eine andere Möglichkeit ist, dass die Anregungsenergie auf ein Elektron der Atomhülle übertragen wird. Dies wird innere Konversion genannt.

Beispiel: Zerfall von Cobalt-60

^{60}Co zerfällt unter Emission von β^- - und γ -Strahlung:



Ein direkter Übergang in den Grundzustand des Tochterkerns ist nicht möglich.

Mit einer Wahrscheinlichkeit von 99,88% hat der ^{60}Ni -Kern nach dem β^- -Zerfall eine Anregungsenergie von 2,506 MeV. Der Übergang in den Grundzustand geschieht durch die Emission von zwei γ -Quanten. Die Energie der einzelnen Photonen entspricht der Differenz der Energie des Ausgangszustandes und der Energie des finalen Zustandes. Abbildung 2.1 zeigt den schematischen Zerfall von ^{60}Co . Die Pfeile symbolisieren dabei die Zerfälle zum entsprechenden Energieniveau. Die Zerfallsart, -energie und -wahrscheinlichkeit sind ebenso aufgeführt wie die Halbwertszeit.⁷

Physikalisch wird die Gammastrahlung vom angeregtem ^{60}Ni -Kern emittiert. In den Datenbanken wird sie dennoch dem ^{60}Co -Zerfall zugeordnet, da sie für diesen *charakteristisch* ist. Charakteristische Gammaquanten werden im Gammaskpektrum als Linien bezeichnet.

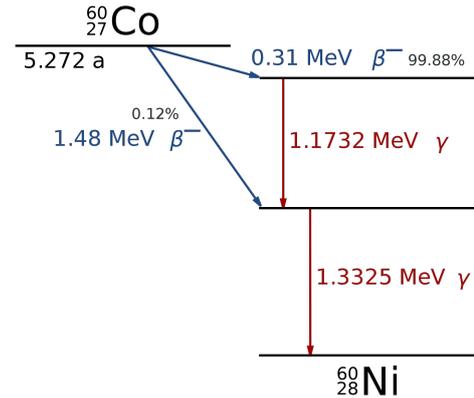


Abb. 2.1.: Zerfallsschema von ^{60}Co [Ind07].

2.2. Wechselwirkung von Gammastrahlung mit Materie

Sowohl die Vermessung als auch die Abschirmung von Gammastrahlung beruht auf der Wechselwirkung der Photonen mit Materie. Hierbei ist die ionisierende Wirkung der hochenergetischen Photonen von entscheidender Bedeutung. Die Gammaquanten geben einen Teil oder ihre gesamte Energie bei der Wechselwirkung ab. Es kommt folglich zu einer Änderung ihrer Energie und ihres Impulses.

Es lässt sich beobachten, dass die Intensität eines monoenergetischen Photonenstrahls I bei der Durchdringung eines Mediums exponentiell abnimmt:

$$I = I_0 \cdot e^{-\mu d} \quad (2.6)$$

Hierbei ist I_0 die Startintensität, d die Dicke des Mediums (in cm) und μ der lineare Absorptionskoeffizient (in cm^{-1}). μ ist abhängig von der Energie der Photonen, der Kernladungszahl des Materials und der Dichte des Materials ρ (in g/cm^3).

Der Kehrwert von μ entspricht der *mittleren freien Weglänge* l . Nach dieser Strecke ist die Intensität des Photonenstrahls auf $I = I_0/e$ gefallen.

$$l = \frac{1}{\mu} \quad (2.7)$$

In der Praxis ist die Verwendung des Massenschwächungskoeffizienten (μ/ρ) gebräuchlicher. Dieser ist unabhängig von der Dichte und gilt somit für jeden Aggregatzustand des Materials. Dadurch wird Formel 2.6 zu:

$$I = I_0 \cdot e^{-(\mu/\rho)\rho d} \quad (2.8)$$

⁷Ein vollständiges Schema würde zusätzlich Informationen über die Kernspins und Paritäten der Energieniveaus enthalten.

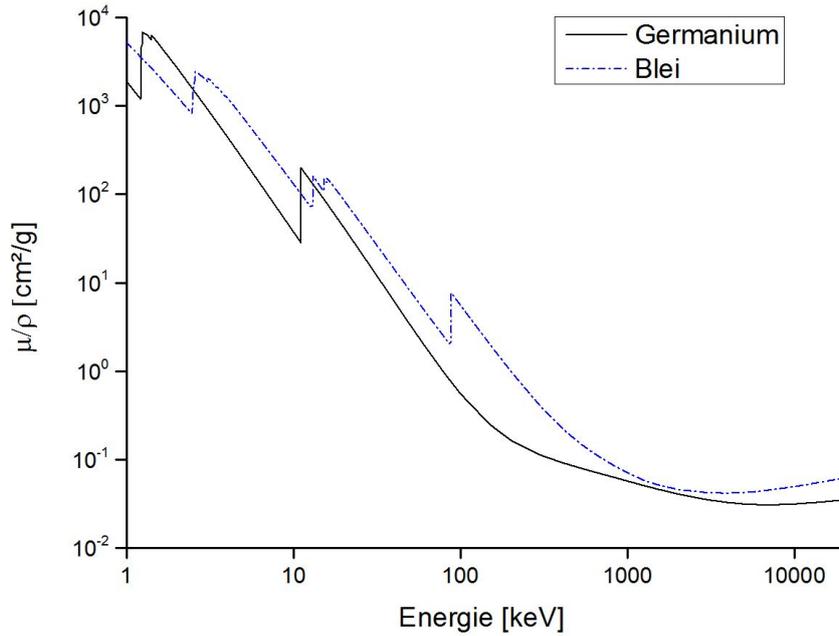


Abb. 2.2.: Gemessene Massenschwächungskoeffizienten in Germanium und Blei. Die verwendete Daten stammen aus [JHH].

In Abbildung 2.2 ist die Energieabhängigkeit von (μ/ρ) aufgezeichnet. Bei Energien oberhalb von 20 keV ist die Abschwächung durch Blei stärker als von Germanium, der Kurvenverlauf ist vergleichbar. Die Abschwächung sinkt mit steigender Energie. Bei bestimmten Energien steigt sie sprunghaft, um dann auf ein Minimum zu sinken. Bei hohen Energien ist ein leichter Anstieg zu erkennen.

Der lineare Abschwächungskoeffizient steht mit dem totalen Wirkungsquerschnitt σ_t in folgender Beziehung:

$$\mu = \sigma_t \cdot \rho \cdot N_A / m \quad (2.9)$$

Hierbei ist N_A die Avogadro-Konstante, m die molare Masse, ρ die Dichte. Im Wirkungsquerschnitt sind alle maßgeblichen Wechselwirkungen berücksichtigt, die zu einer Abschwächung eines Photonenstrahls führen. Photonen mit Energien unterhalb $1,022 \text{ MeV}$ interagieren nur durch Stöße. In der Regel sind es Stöße mit Elektronen. Die hauptsächlichen Prozesse hierbei sind der *photoelektrische Effekt* und die *Comptonstreuung*. Ist die Energie von $1,022 \text{ MeV}$ überschritten, ist auch *Paarbildung* möglich. Die linearen Abschwächungskoeffizienten (μ_i) in Germanium für jede dieser drei Wechselwirkungen ist in Abbildung 2.3 gezeigt. Der in Abbildung 2.2 aufgezeichnete Massenschwächungskoeffizienten für Ge entspricht $\Sigma_i(\mu_i/\rho)$.

Die folgenden Ausführungen basieren auf [KD88] und [Kno89].

2.2.1. Photoelektrischer Effekt

Bei einer Wechselwirkung eines Photons und einem gebundenen Elektron kann die gesamte Energie vom Elektron absorbiert werden. Das Elektron wird dadurch bei genügend Energie aus der Bindung gelöst. Dies wird als photoelektrische Absorption bzw. Photoeffekt bezeichnet.

Da die Energie, die bei dem Prozess auf den Atomkern übertragen wird, vernachlässigbar klein ist, ergibt sich die kinetische Energie des Elektrons aus der Differenz der Photonenenergie und der Bindungsenergie des Elektrons:

$$E_e = E_\gamma - E_b \quad (2.10)$$

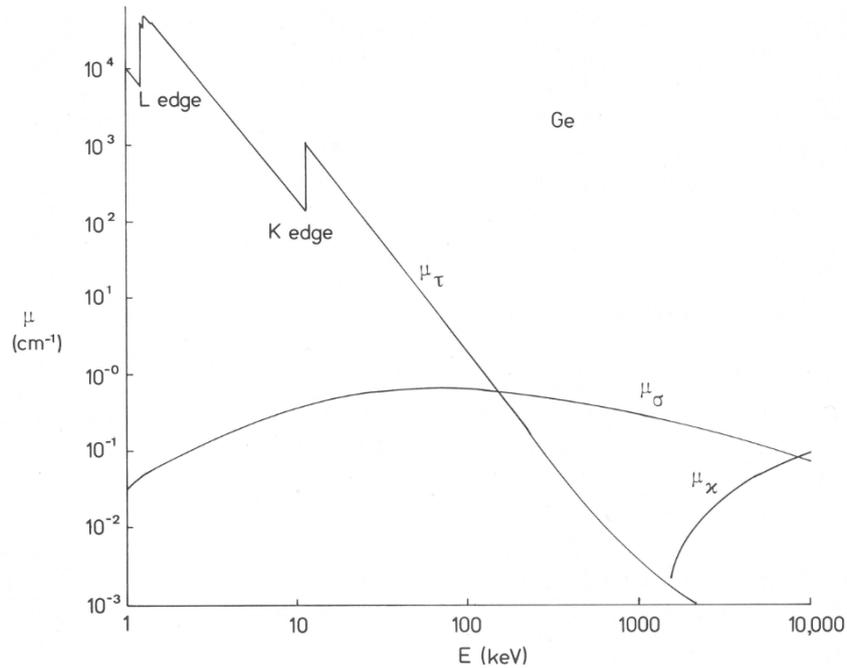


Abb. 2.3.: Die linearen Abschwächungskoeffizienten des Photoeffekts μ_τ , des Comptoneffektes μ_σ und der Paarbildung μ_χ in Germanium [KD88].

Die Wahrscheinlichkeit des photoelektrischen Effekts sinkt mit steigender Energie. Der Wirkungsquerschnitt steigt sprunghaft an, wenn die kritische Energie erreicht ist, um auch Elektronen aus der nächstinneren Schale zu lösen. So kommt es in der Energieabhängigkeit des Absorptionskoeffizienten zu Unstetigkeiten (*Kanten*), die nach der jeweiligen Schale benannt sind, siehe Abbildung 2.3. Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion ist sowohl von der Energie des Photons (E_γ) als auch von dem absorbierenden Material abhängig. Mit Material einer höheren Ordnungszahl Z lässt sich Gammastrahlung sehr viel besser abschirmen, weil die Elektronen stärker gebunden sind. Gleichzeitig ist zu beobachten, dass bei hohen Gammaenergien der photoelektrische Effekt praktisch keine Rolle spielt. Der Wirkungsquerschnitt kann nicht analytisch hergeleitet werden, aber eine Abschätzung, welche die sprunghaften Anstiege nicht berücksichtigt, ist gegeben durch [KD88]:

$$\sigma_\tau \propto Z^{4,5} \cdot E_\gamma^{-3,5} \quad (2.11)$$

Der Exponent von Z variiert dabei zwischen 4 und 5.

Der mit der Formel 2.9 berechnete lineare Abschwächungskoeffizient μ_τ ist in Abbildung 2.3 aufgezeichnet.

Da Elektronen im Gegensatz zu Photonen nicht elektrisch neutral sind, werden sie in Materie viel stärker abgebremst. Deswegen wird beim photoelektrischen Effekt in der Regel die gesamte Energie des Photons im Material deponiert. Entscheidend hierfür ist die sogenannte Bremsstrahlung, siehe Seite 10.

2.2.2. Comptoneffekt

Als Comptoneffekt wird die Wechselwirkung eines Photons mit einem freien Elektron bezeichnet. Hierbei kann nur ein Teil der Photonenenergie und des -impulses übertragen werden.

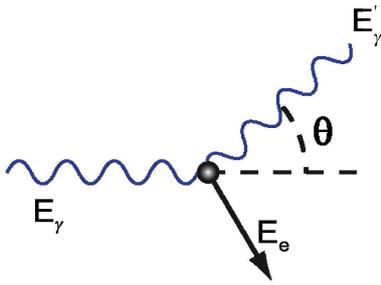


Abb. 2.4.: Illustration des Comptoneffekts. Das Photon überträgt Energie auf ein freies Elektron. [Kli09]

Die Energie des Photons nach dem Stoß E'_γ ist abhängig vom Winkel Θ zwischen der Bahn des einfallenden Photons und der Bahn des gestreuten Photons. Im Ruhesystem des Elektrons gilt:

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0c^2} (1 - \cos\Theta)} \quad (2.12)$$

Die Energie des gestreuten Elektrons ist somit:

$$\begin{aligned} E_e &= E_\gamma - E'_\gamma \\ &= E_\gamma \left(1 - \frac{1}{1 + E_\gamma(1 - \cos\Theta)/(m_0c^2)} \right) \end{aligned} \quad (2.13)$$

Hierbei ist m_0c^2 die Ruheenergie des Elektrons (511 keV).

Ist der Streuwinkel klein ($\Theta \approx 0^\circ$), wird fast keine Energie übertragen und das Elektron bleibt in Ruhe. Ist er hingegen groß ($\Theta \approx 180^\circ$), wird der Energieübertrag maximal $E/(1 + 2E_\gamma/m_0c^2)$ und das Elektron wird in die einfallende Richtung beschleunigt. Aufgrund der Erhaltungssätze kann nicht die gesamte Energie übertragen werden.

Die Photonen werden nicht isotrop gestreut. Der differentielle Wirkungsquerschnitt wird durch die Klein-Nishina Formel berechnet. Es kann gezeigt werden (vergl.[LSB78]): Je höher die Photonenenergien ist, desto wahrscheinlicher wird die Photonenbahn nur wenig abgelenkt.

Eine gute Abschätzung der Z - und E -Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts ist [KD88]:

$$\sigma_\sigma \propto Z \cdot E^{-1} \quad (2.14)$$

In Abbildung 2.3 ist zu sehen, dass der Comptoneffekt bei niedrigen Gammaenergien vernachlässigbar ist, aber in Germanium bei Energien zwischen 150 keV und ca. 10 MeV überwiegt.

Das Photon trägt die Energie E'_γ bis zur nächsten Wechselwirkung weiter. Die Energie E_e wird im umliegenden Material deponiert.

2.2.3. Paarbildung

In Coulombfeldern kann die Energie eines energiereichen Photons in ein Elektron-Positron-Paar umgewandelt werden. Am häufigsten geschieht dies in der Nähe eines Atomkerns, da hier verhältnismäßig starke Coulombfelder vorhanden sind.

Damit dieser Prozess möglich ist, muss die Energie des einfallenden Photons mindestens die Summe aus der Ruheenergie des Elektrons ($m_e = m_0c^2$), der Ruheenergie des Positrons (m_e), sowie der Rückstoßenergie auf den Atomkern betragen:

$$E_{\gamma,min} = 2m_0c^2(1 + m_e/M) \approx 1,022 \text{ MeV} \quad (2.15)$$

Hierbei ist M die Masse des wechselwirkenden Kerns. Der Betrag der Rückstoßenergie ist so gering,⁸ dass die Mindestenergie durch die doppelte Ruheenergie eines Elektrons abgeschätzt werden kann. Wie in Abbildung 2.3 zu sehen, ist erst bei Energien von einigen MeV der Prozess der Paarerzeugung relevant. Der Energieüberschuss ($E_\gamma - 1,022 \text{ MeV}$) wird dabei in kinetische Energie der beiden Teilchen umgewandelt.

Wie bei der Comptonstreuung wird nicht die gesamte Energie des Photons in der unmittelbaren Umgebung des Wechselwirkungspunktes deponiert. Das Elektron und auch das Positron werden von der Materie abgebremst. Das Positron wird mit einem Elektron annihilieren. Dabei

⁸Mit der Masse eines Germaniumkerns gilt $m_e/M = 7,6 \cdot 10^{-6}$

entstehen zwei Photonen mit jeweils annähernd der Energie 511 keV.⁹ Wegen der Impulserhaltung werden die Photonen in entgegengesetzte Richtungen emittiert. Die Photonen transportieren die Energie vom Wechselwirkungspunkt in andere Umgebungen, wo die Energie durch den Compton- bzw. den photoelektrischen Effekt deponiert wird. Da die Paarbildung nur in Coulombfeldern stattfinden kann, ist der Wirkungsquerschnitt hauptsächlich von der Kernladungszahl Z abhängig. Die Abschätzung ist [KD88]:

$$\sigma_{\kappa} \propto Z^2 \quad (2.16)$$

Wie in Abbildung 2.3 zu sehen ist, dominiert dieser Effekt bei hohen gamma-Energien, für Germanium bei über 10 MeV.

2.2.4. Weitere Effekte

Bei Wechselwirkungen zwischen Materie und hochenergetischen Photonen gibt es noch viele weitere Effekte. Unter anderem kann es bei niedrigen Energien zu kohärenter Strahlung kommen. Die Photonen werden gestreut, ohne dass die Energie geändert wird (Rayleigh- und Thomson-Streuung). Auch kann das Photon direkt mit den Atomkernen streuen.

So interessant diese und weitere Effekte für die Betrachtung eines einzelnen Photons sein können, sind sie für die Gammaskopimetrie nicht wichtig, weil der Einfluss auf das Spektrum vernachlässigbar klein ist.

2.3. Folgeprozesse der Wechselwirkungen von Photonen mit Materie

Die in Materie deponierte Gammaenergie kann auch zur Emission elektromagnetischer Strahlung führen. Diese Strahlung kann die Interpretation eines Gammaskopetrum erschweren. Die für die Gammaskopimetrie relevanten Ursprünge von Photonen, die nicht direkt aus dem Zerfall radioaktiver Kerne folgen, werden im Folgenden erläutert.

Charakteristische Röntgenstrahlung / X-rays

Röntgenfluoreszenz bzw. charakteristische Röntgenstrahlung entsteht bei Übergängen zwischen Energieniveaus der Elektronenhüllen von Atomen oder Molekülen. Wie beschrieben, gibt es Prozesse, die zu Vakanzen in den inneren Elektronenhüllen - meistens in der K Schale - führen. Der Übergang eines Elektrons einer höheren Schale in diese Vakanz führt zu einer Reduzierung der Gesamtenergie innerhalb des Atoms. Die freiwerdende Energie kann in Form eines Photons abgegeben werden. Die für diesen Prozess typische Photonenenergie liegt in einem Bereich zwischen 100 eV und 120 keV. Nach dem Moseley-Gesetz ist die spezifische Übergangsenergie proportional zu $(Z - 1)^2$. Deswegen kann anhand der Röntgenlinien festgestellt werden, welche Elemente vorhanden sind. Eine Isotopenidentifikation ist über diese Strahlung nicht möglich.

Abbildung 2.5 verdeutlicht die Entstehung von charakteristischer Röntgenstrahlung und die Benennung der Linien am Beispiel eines Nickel-Atoms. Aufgezeichnet sind die Energieniveaus des Atoms. Im Grundzustand (Abb. 2.5a) sind alle unteren Schalen komplett mit Elektronen gefüllt. In der Regel wird eine Vakanz durch ein Elektron der nächsthöheren Schale gefüllt. Dadurch entstehen mehrere Photonen (vergl. Abb. 2.5c), bis das Atom wieder im Grundzustand ist. Die Linien werden dem zugrundeliegenden Übergang entsprechend benannt. Ein lateinischer Buchstabe bezeichnet die Schale, in welche das Elektron übergeht (K), ein griechischer Buchstabe wird abhängig von der Ausgangsschale angefügt (K_{α}). Eine Ziffer gibt an, aus welchem Energieniveau der Schale der Übergang geschieht ($K_{\alpha 2}$).

⁹Abweichungen im Bereich bis zu einem keV können mit kinetischer bzw. Bindungsenergie der Elektronen erklärt werden.

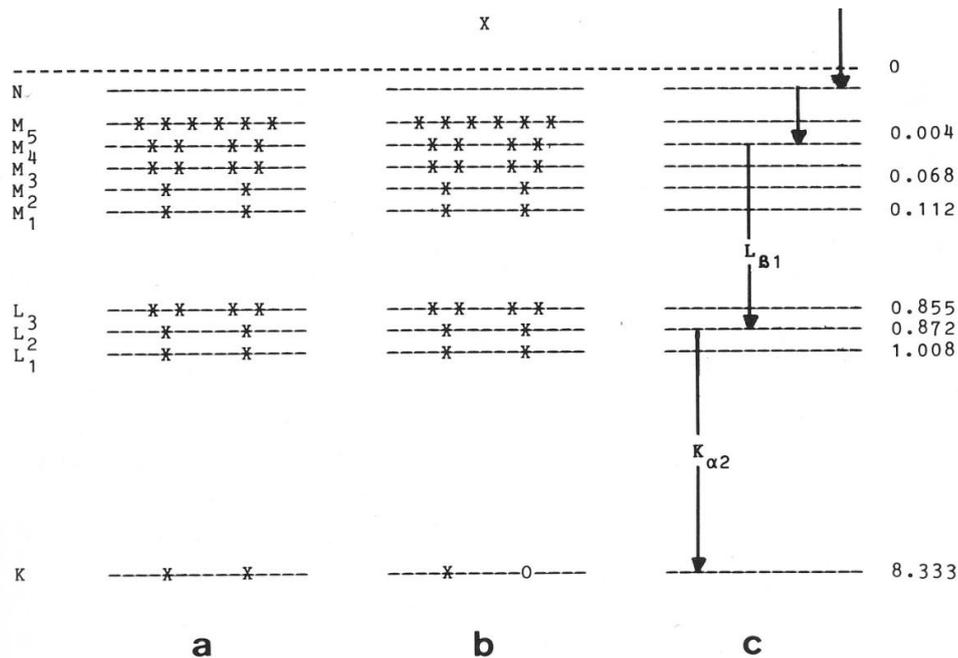


Abb. 2.5.: Energieniveaus eines Nickelatoms mit entsprechenden Bindungsenergien der Elektronen (in keV).

(a) Elektronenverteilung im Grundzustand; (b) Ionisierung durch Anregung eines K-Elektrons; (c) Eine typische Übergangskaskade in den Grundzustand. [KD88]

Konkurrierend zur Röntgenfluoreszenz ist der Auger-Effekt. Bei diesem wird kein Photon emittiert, sondern die freiwerdende Energie wird auf ein Elektron übertragen, das in den ungebundenen Zustand übergeht. Dieses Elektron hat dieselbe kinetische Energie, die das Photon gehabt hätte, vermindert um die eigene Bindungsenergie. Durch diesen Effekt entstehen in den Elektronenschalen mehr Vakanzen, die aufgefüllt werden müssen.

Bremsstrahlung

Wird ein geladenes Teilchen beschleunigt, entsteht Bremsstrahlung. Dies betrifft vor allem schnelle Elektronen, die Materie durchqueren. Durch die Coulombfelder der Atome werden sie abgebremst, und ein Teil ihrer kinetischen Energie wird in elektromagnetische Strahlung umgewandelt. Dieser Effekt ist umso stärker, je stärker das entsprechende Coulombfeld ist. Das Energiespektrum der Bremsstrahlung ist kontinuierlich und durch die Energie des Elektrons nach oben begrenzt. Gammaquanten niedrigerer Energien entstehen deutlich häufiger. Dieser Effekt führt maßgeblich dazu, dass die gesamte Energie eines Sekundärelektrons im umliegenden Material deponiert wird.

2.4. Detektion von Gammastrahlung

Die ionisierende Wirkung der Gammastrahlung ist nützlich, um sie zu detektieren. Die Sekundärelektronen misst man bei angelegter Spannung als Strompuls. Aus der Stärke des Pulses wird die im Detektor deponierte Energie ermittelt. Wie effizient und wie genau diese Messung ist, hängt von der Größe des Detektors und der Art des verwendeten Materials ab. Deswegen werden je nach Aufgabe unterschiedliche Detektoren eingesetzt. Grundsätzlich muss das aktive Material so beschaffen sein, dass die Wahrscheinlichkeit für die Erzeugung von Elektronen, durch

Wechselwirkungen der Photonen innerhalb des Detektors, möglichst groß ist. Außerdem muss der Detektor in der Lage sein, die Energie der Sekundärelektronen genau zu erfassen.

Für eine genaue Isotopenbestimmung ist eine gute Energieauflösung notwendig. Zu diesem Zweck werden häufig Germanium-Halbleiter-Detektoren herangezogen. Ihre Funktionsweise wird im Folgenden erläutert, um anschließend die typischen Merkmale eines gemessenen Gammaskpektrums zu analysieren. Für diese Arbeit ist vor allem die Betrachtung eines Detektorkristalls aus hochreinem Germanium (HPGe: **H**igh **P**urity **G**ermanium) von Bedeutung. Die folgenden Erläuterungen zur Detektion von Gammastrahlung beruhen auf [Kno89], [HAS91] und [KD88].

2.4.1. Halbleiterdetektoren aus Germanium

Ein Halbleiter ist ein Element, dessen kristalline Form zu einer Bänderstruktur führt und dessen Bandlücke zwischen dem Valenz- und dem Leitungsband nicht größer als 4 eV ist. Im gekühlten Zustand sind das Leitungsband nicht und das Valenzband voll besetzt.¹⁰ Ein durch ein Photon beschleunigtes Elektron wird in das Leitungsband gehoben, da seine Energie um ein vielfaches höher ist als die Bandlücke. Im Leitungsband können sich die Elektronen quasifrei bewegen. Beim Anlegen einer Spannung werden sie zu einer Elektrode gezogen und dort eingefangen. Die Vakanz - das Loch, das im Valenzband entsteht - wird genau in die entgegengesetzte Richtung bewegt. Diese Bewegung kommt durch den Elektronentransfer zustande. Da die Transportart so unterschiedlich ist, driften Elektronen und Löcher unterschiedlich schnell. Ohne äußeres E-Feld würden Loch und Elektron nach einiger Zeit annihilieren.

Beim Transport des Elektrons durch das Material wird die kinetische Energie gleichmäßig auf andere Elektronen im Valenzband übertragen, die dadurch ins Leitungsband gehoben werden. So entstehen Elektron-Loch-Paare, deren Anzahl proportional zur im Detektor deponierten Energie ist. Die Anzahl der Paare ist abhängig davon, wie viel Energie ϵ aufgebracht werden muss, um ein Elektron aus der Bindung zu lösen. Bei Gasdetektoren wird eine Ionisationsenergie von $\epsilon \approx 30 \text{ eV}$ benötigt. Wird Germanium mit flüssigem Stickstoff auf 77 K gekühlt, beträgt $\epsilon = 2,96 \text{ eV}$. Da bei Germanium mehr Ladungsträger entstehen, sind die statistischen Fehler geringer und das Auflösungsvermögen besser.

Die Möglichkeit zur Vermessung dieser Ladung ist ein qualitatives Merkmal eines Detektors. In Festkörpern ist für Sekundärelektronen im MeV -Bereich die mittlere freie Weglänge auf einige mm beschränkt. Sie werden selbst bei geringer Detektorgröße nicht entweichen.

Wird ein Photon mehrfach innerhalb des aktiven Materials gestreut, wird die gesamte deponierte Energie gemessen. Denn die Zeit, die für den Transport der Sekundärteilchen benötigt wird, ist deutlich größer als die Zeit, die ein Photon benötigt, um die mittlere freie Weglänge zurückzulegen.

Ob ein Photon im aktiven Material mehrfach gestreut wird, ist von der Größe desselben abhängig. Sekundärphotonen der Comptonstreuung können eine mittlere freie Weglänge von ca. $0,5 \text{ m}$ haben.

Je dicker der Detektorkristall ist, desto größer ist die Wahrscheinlichkeit, dass die gesamte Energie eines hochenergetischen Photons gemessen wird. Dafür steigt die Zeit, die zur Ladungssammlung benötigt wird und das Auflösungsvermögen bei niedrigeren Energien sinkt.

Germanium hat gegenüber anderen für Gammaskpektrometrie möglichen Halbleitern wie Silizium mehrere Vorteile:

- Durch die höhere Ordnungszahl steigt der Wirkungsquerschnitt für den Photoeffekt und damit die Wahrscheinlichkeit, dass die gesamte Gammaenergie gemessen wird.

¹⁰Bei 0 K ist jeder Halbleiter ein Isolator. Ab welcher Temperatur er als Leiter geeignet ist, ist für jedes Material spezifisch.

- Eine höhere Elektronen- und Loch-Mobilität führt zu einer besseren Auflösung.
- Die geringere Bandlücke ermöglicht eine bessere Auflösung.

Zu einem Detektor gehört zusätzlich zum aktiven Material die Elektronik, welche die Signale misst und verarbeitet. Der gemessene Strompuls wird (ggf. verstärkt) in einen Spannungspuls übersetzt und anschließend in einen digitalen Wert umgewandelt und abschließend einem Kanal zugeordnet. Die Kanäle haben alle dieselbe Breite. So wird aus der Summe der gemessenen Photonen ein Spektrum.

2.4.2. Charakteristika eines Gammaskpektrums

In einem Gammaskpektrum ist die Anzahl der Gammaquanten in Abhängigkeit zu ihrer Energie aufgetragen. Ein detailliertes Gammaskpektrum weist immer bestimmte Charakteristika auf, die auf die spezifische Wechselwirkung der Strahlung mit Materie zurückzuführen ist. Der Photoeffekt und die Paarbildung führen zu Linien, die Comptonstreuung führt zum sogenannten Comptonkontinuum. Abbildung 2.6 zeigt das Spektrum einer ^{60}Co Probe. Dieses wurde von Martin Weil mit einem HPGe-Detektor aufgenommen.¹¹ Die wesentlichen Merkmale eines Spektrums werden im folgenden Abschnitt erläutert und sind - soweit sie erkennbar sind - in der Abbildung markiert. Die Analyse eines Spektrums gelingt durch die korrekte Interpretation der Linien.

Photolinie / Full Energy Peak

Durch die Bestimmung der Photolinien werden charakteristische Photonen nachgewiesen. Grundlegend für die Entstehung der Linien ist die komplette Absorption der Gammaenergie. Die Linienenergie entspricht der Gammaenergie und der Flächeninhalt der Linie über dem Untergrund entspricht der Anzahl der Photonen, deren gesamte Energie im Detektor gemessen wurde. Wie auf Seite 5 erläutert, entstehen beim Zerfall von ^{60}Co zwei charakteristische Photonen mit den Energien $1,1732\text{ MeV}$ und $1,3325\text{ MeV}$. Diese Strahlung ist in der Abbildung 2.6 deutlich an den Photolinien (P) zu erkennen.

Compton-Untergrund

Die in dieser Arbeit untersuchten hochenergetischen Photonen interagieren häufig über Comptonstreuung. Verlässt das Photon nach der Wechselwirkung den Detektor, kann dementsprechend nur ein Teil der ursprünglichen Photonenergie gemessen werden. Die Verteilung der so im Detektor deponierten Energie ist nicht diskret. Die Photonen eines Gammaübergangs verursachen einen kontinuierlichen Untergrund im Spektrum (C_U) mit einer typischen Form. Sie reicht von der kleinsten messbaren Energie bis zu einem Maximalwert, der sogenannten *Comptonkante*. Die maximal mit einer Comptonstreuung übertragbare Energie $E_e(max)$ kann mit der Formel 2.12 (siehe Seite 8) berechnet werden, mit $\Theta = 180^\circ$. In Abbildung 2.6 sind zwei Comptonkanten zu erkennen (C_K). Sie sind jeweils bei $E - E_e(max)$ zu finden und können der entsprechenden Linie zugeordnet werden.

Zwischen der Comptonkante und der Linie kommt es zu dem sogenannten *Comptontal* (C_T). Energien in diesem Intervall können gemessen werden, weil ein Photon auch mehrfach durch Comptonstreuung im Detektor wechselwirken kann oder durch Comptonstreuung in den Detektor gestreut wird und dabei nur wenig Energie abgeben hat.

Es kommt zu einem Anstieg des Untergrunds vor der Kante, da der Energieübertrag auf die Sekundärelektronen bei einem Streuwinkel zwischen 110° und 180° ähnlich groß ist und damit

¹¹Solche Proben werden häufig zu Referenzzwecken (z.B. zur Detektorkalibrierung) vermessen.

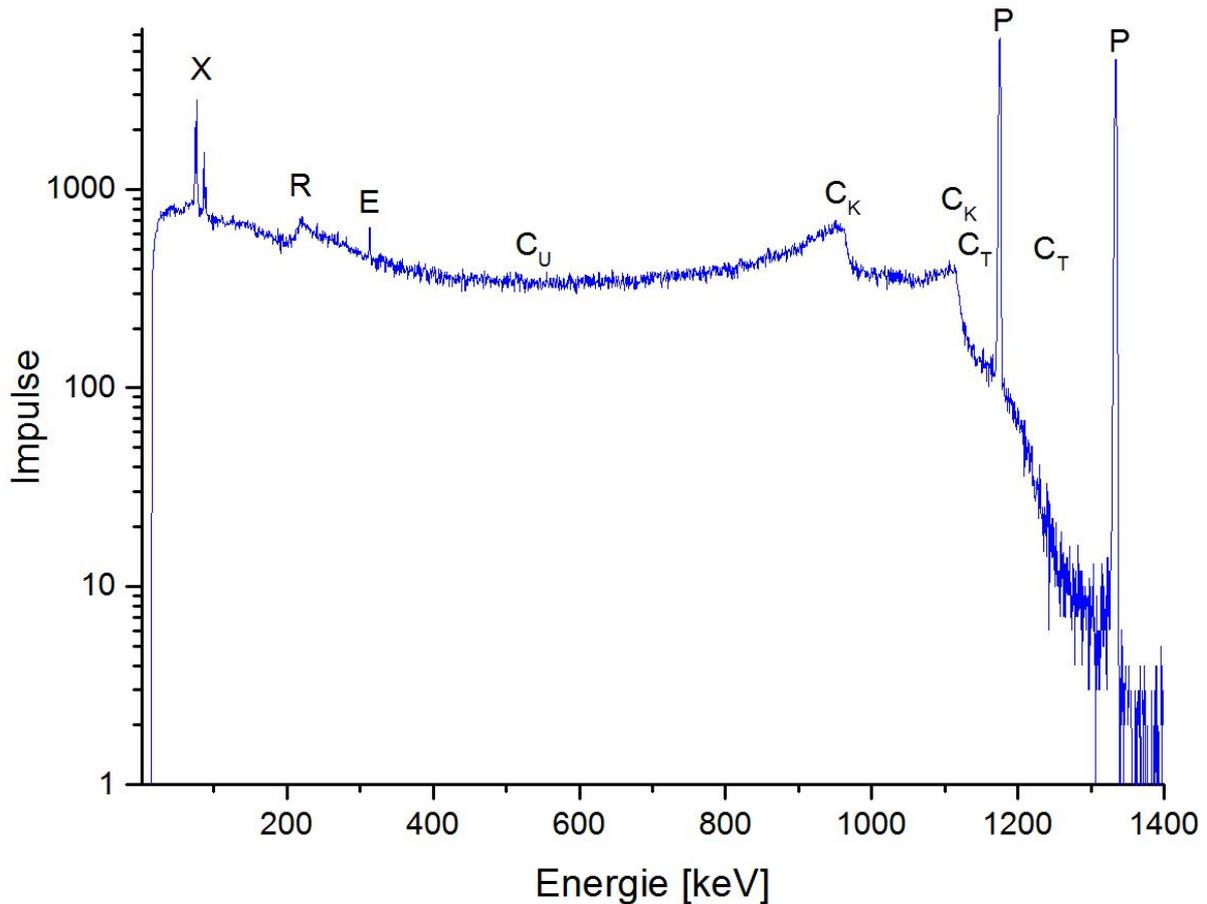


Abb. 2.6.: Gammaspektrum einer ^{60}Co Probe [Wei13]. Die wesentlichen Merkmale sind:
P: Photolinie, C_T : Comptontal, C_K : Comptonkante, C_U : Comptonkontinuum,
E: Escape-Linie, *R*: Rückstreuante, *X*: charakteristische Röntgenstrahlung

überdurchschnittlich häufig ungefähr $E - E_e(\text{max})$ gemessen wird. Den Photonen bleiben dabei 200 keV bis 256 keV .

Dies führt auch zu der sogenannten *Rückstreuante* (*R*). Die hier gemessenen Photonen haben in der Umgebung des Detektors durch Comptonstreuung Energie $\approx E_e(\text{max})$ deponiert und sind anschließend im Detektor nachgewiesen worden.

Zusätzlich mögliche Linien

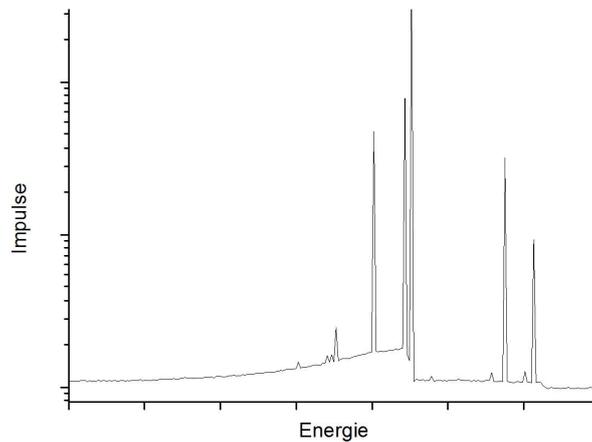
- Röntgenlinien: Auf Seite 9f wird die Entstehung der Röntgenlinien beschrieben. In dem ^{60}Co Spektrum sind Röntgenlinien von Blei zu finden (*X*). Für die Messung wurde eine Bleiabschirmung verwendet, um mögliche Fremdstrahlung zu minimieren [Wei13].
- Escape-Linien: Bei Wechselwirkungen im Detektor kann ein Photon bestimmter Energie entstehen, z.B. durch Röntgenfluoreszenz ($< 120 \text{ keV}$) oder Paarproduktion ($2 \times 511 \text{ keV}$). Ob diese Photonen gemessen werden können oder ob nur die kinetische Energie der Sekundärteilchen gemessen wird, hängt von der Detektorgröße ab. Verlässt ein Großteil der so entstanden Photonen den Detektor, kommt es zu einer Linie, deren Energie der der Photolinie, vermindert um diese Photonenenergie, entspricht. In der Messung ist eine Double-Escape-Linie zu sehen (*E*). Sie entspricht der Energie $1,732 \text{ MeV} - 2 \cdot 511 \text{ keV}$ und zeigt,

dass die bei der Annihilation entstehenden Photonen zu einem größeren Teil nicht vom Detektor erfasst werden.

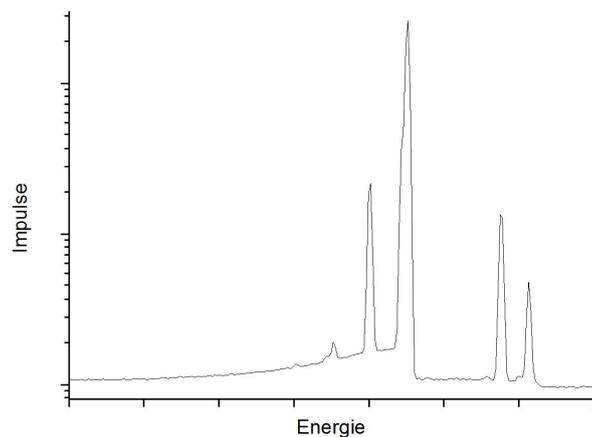
- 511 *keV* Linie: Durch Paarproduktion in der Umgebung kann es dazu kommen, dass eine Linie bei 511 *keV* gemessen wird.
- Summationslinien: Wenn mehrere Photonen nahezu gleichzeitig detektiert werden, entspricht die gemessene Energie der Summe der γ -Energien. Bei ^{60}Co ist dies u.a. 2,506 *MeV*. Dieser Effekt hängt von der Aktivität der Probe und dem Detektormaterial ab.

Linienverbreiterung

Das Auflösungsvermögen eines Detektors ist begrenzt. Die Zeit, welche zum Messen der Sekundärelektronen benötigt wird, führt ebenso zu einer Linienverbreiterung, wie elektronisches Rauschen. Abbildung 2.7 zeigt die Linienverbreiterung durch Detektorelektronik. Damit verbundenen sind Schwierigkeiten der Linienidentifizierung, da sich dicht benachbarte Linien überlagern.



(a) Theoretisches Spektrum



(b) Mögliches Messergebnis

Abb. 2.7.: Einfluss der Detektorelektronik auf die Linienbreite eines Spektrums.

3. MCNP - Monte Carlo N-Particle Code

MCNP wurde im Los Alamos National Laboratory programmiert und dort - seit seiner Veröffentlichung 1977 - weiterentwickelt. Es basiert auf dem Monte Carlo Prinzip und simuliert Strahlung- sowie Teilchentransporte. Dabei wird für jedes einzelne Teilchen der Pfad von der Quelle bis zum Ende ermittelt. Die Summe der Einzelpfade ergibt eine Vorhersage für das Ergebnis einer physikalischen Messung. Für die vorliegende Arbeit wurde MCNP 5 Version 1.60 verwendet, mit welcher in beliebigen Materialien der räumliche Transport von Photonen, Neutronen und Elektronen inklusive der Entstehung von Sekundärteilchen simuliert werden kann.

Die möglichen Ausgabeformate von MCNP sind vielfältig. Es kann beispielsweise der durchschnittliche Teilchenfluss über eine beliebige Oberfläche ausgegeben werden. Auch ein Pulshöhenspektrum, wie es in einem Gammadetektor entsteht, ist ein mögliches Simulationsergebnis.

Die folgenden Ausführungen erläutern die Funktionsweise des Simulationsprogramms. Dabei wird vorrangig die Simulation von Photonen behandelt. Die Erläuterungen basieren größtenteils auf den Programmanleitungen [Tea03a] und [Tea03b], in denen auch weiterführende Informationen zu finden sind.

3.1. Monte Carlo Methode

Eine numerische Lösung stochastischer Probleme kann mit der Monte Carlo Methode ermittelt werden. Die Grundlage bildet eine große Anzahl unabhängiger Zufallsexperimente. Daher ist die Monte Carlo Simulation geeignet den Transport von Teilchen¹² durch Materie zu bestimmen: Es werden die Wechselwirkungen von vielen einzelnen Teilchen, die sich nicht gegenseitig beeinflussen, innerhalb der Materie simuliert. Die Wahrscheinlichkeit, dass eine Wechselwirkung stattfindet, ist durch den Wirkungsquerschnitt σ festgelegt. Trifft ein Teilchen auf ein Atom,¹³ wird anhand einer Zufallszahl ξ ermittelt, ob es zu einer Wechselwirkung kommt. Hierfür muss $\xi \leq \sigma$ gelten. Welche Wechselwirkung stattfindet, kann mit Hilfe weiterer Zufallszahlen und entsprechender Wirkungsquerschnitte ermittelt werden. Kommt es zu einer Wechselwirkung, ändern sich die Teilchenenergie und -richtung entsprechend. Es wird also nicht der (Stoß)prozess mit all seinen Facetten, sondern nur ein mögliches Ergebnis berechnet. So wird der Teilchenpfad von der Quelle bis zum Ende bestimmt. Ein Teilchenpfad endet, wenn die gesamte Energie absorbiert wird (bzw. auf einen Minimalwert sinkt) oder wenn der äußere Rand des Simulationsraums erreicht wird. Entstehen auf dem Weg zusätzliche Teilchen, werden ihre Pfade entsprechend bestimmt.

Um die statistische Ungenauigkeit möglichst gering zu halten, ist eine große Quantität (der Zufallsexperimente) notwendig. [Tea03a][E.D75][Kob91]

¹²Im Folgenden bezieht sich der Terminus *Teilchen* auf n , e und γ , da die Simulation des Strahlungstransportes für sie nach denselben Prinzipien funktioniert.

¹³Die Wahrscheinlichkeit hierfür ist abhängig von dem Verhältnis der zurückgelegten Strecke zur mittleren freien Weglänge.

3.2. Simulierbare physikalische Prozesse

Für die Qualität der Simulation ist eine möglichst genaue Kenntnis der Wirkungsquerschnitte entscheidend. Für die Simulationen in dieser Arbeit wurde auf die MCNP-Bibliothek „04.p“ zugegriffen. Sie basiert auf der ENDF/B-VII.1 Datenbank [MC11]. Diese Datenbank enthält u.a. Informationen über photoelektrische Absorption, Comptonstreuung und Paarerzeugung für Gammaenergien von 1 keV bis 100 GeV und für alle bekannten Isotope mit Z von 1 bis 100.

Die Wirkungsquerschnitte für **photoelektrische Absorption** und **Paarproduktion** sind für viele Energien gemessen worden und in den Datenbanken gespeichert. Der für die Simulation verwendete kontinuierliche Verlauf entspricht diesen punktwise geordneten Daten.

Wirkungsquerschnitte für die **Comptonstreuung** werden mit der Klein-Nishina Formel berechnet. Sie wird mit Gammaenergie- und Isotopenspezifischen Formfaktoren angepasst, um Bindungseffekte zu berücksichtigen. Für niedrige E_γ und Isotope mit einer großen Massenzahl steigt die Wahrscheinlichkeit, dass die Richtung der Photonen bei einer Streuung geändert wird. Die kohärente Thomson-Streuung wird ebenfalls simuliert. Hierbei wird ausschließlich die Richtung der Photonen geändert. Der Thomson-Querschnitt wird so korrigiert, dass bei hohen Energien (und bei niedrigen Z) die Photonen weniger stark abgelenkt werden.

MCNP5 berücksichtigt überdies diverse Wechselwirkungen zwischen Strahlung und Atomkernen. In dieser Arbeit wird nicht weiter darauf eingegangen, da diese für Photonen sehr unwahrscheinlich sind.

Die im Material deponierte Energie kann als Pulshöhenspektrum ausgegeben werden. Der Elektronendrift und Effekte der Detektorelektronik sind jedoch nicht Teil der Simulation. Daher ist die Standardausgabe ein Spektrum mit unrealistisch guter Auflösung. Um ein realistischeres Ergebnis zu berechnen, gibt es die Möglichkeit, die Linien gaußförmig zu verbreitern [Tea03a]:

$$f(E) = Ce^{-\left(\frac{E-E_0}{A}\right)^2} \quad (3.1)$$

mit E = verbreiterte Energie,
 E_0 = unverbreitete Energie,
 C = normalisierende Konstante und
 A = Standardabweichung

Aus der Standardabweichung A kann die Halbwertsbreite (Δ) der Linien berechnet werden:

$$\Delta = 2\sqrt{\ln 2} \cdot A \quad (3.2)$$

Die Halbwertsbreite nimmt mit steigender Gammaenergie zu. Nutzer der MCNP-Software können beliebige Halbwertsbreiten definieren, indem die Konstanten a , b und c der folgenden Beziehung festgelegt werden:

$$\Delta = a + b\sqrt{E + cE^2} \quad (3.3)$$

Dieselbe Abhängigkeit beschreibt die Halbwertsbreite realer Detektoren.

3.3. Eingabedaten

Sämtliche Parameter der Simulation werden in einer Eingabedatei festgelegt. Die Eingabe wird in drei Blöcke geteilt, die durch eine Leerzeile getrennt werden. Im ersten Block werden die Zellen definiert. Sämtliche Flächen stehen im zweiten Block. Der dritte Block, der Datenblock, enthält alle weiteren Informationen.

Um ein erstes Verständniss der Eingabebefehle zu erlangen, ist die Lektüre eines „*Primers*“ z.B. [JKS01] zu empfehlen. In diesem sind die wichtigsten Erläuterungen aus [Tea03b] verständlich aufbereitet.

3.3.1. Zellen

Eine Zelle entspricht einem klar definierten, abgeschlossenen Teilraum. Jeder Zelle wird eine eindeutige Nummer zugewiesen. Des Weiteren wird festgelegt, mit welchem Material und mit welcher Dichte sie gefüllt ist.

Der Ort und die geometrische Form einer Zelle wird durch den Bezug zu Flächen definiert. Die Verwendung der logischen Verknüpfungen „UND“ und „ODER“ ist möglich. Eine komplizierte Zellengeometrie, die eine große Anzahl an Oberflächen benötigt, verlängert in der Regel die Simulationszeit. Daher sollten Zellen möglichst einfach definiert werden.

Abschließend wird angegeben, welche Teilchenarten in dieser Zelle simuliert werden und ob diese Simulation speziell gewichtet werden soll. Erreicht ein Teilchen eine Zelle mit der Gewichtung 0, endet der Teilchenpfad sofort. So wird der Bereich, der für Simulationen relevant ist, begrenzt.¹⁴

Die Summe aller Zellen ergibt den Simulationsraum. Undefinierte Bereiche und Überschneidungen von Zellen müssen vermieden werden.

3.3.2. Flächen

Flächen bestimmen die Abgrenzungen der Zellen. Sie können eben, sphärisch, zylindrisch, konusförmig, ellipsoidisch, hyperbolisch oder parabolisch sein. Zusätzlich gibt es die Möglichkeit Flächen durch bekannte Punkte zu definieren. Je nach Form der Fläche müssen unterschiedliche Koordinaten angegeben werden. Jeder Fläche wird eine Nummer zugeordnet, auf welche die Zelldefinition zugreift.

Es gibt einige dreidimensionale Standardkörper. Sie werden als „*macro bodies*“ bezeichnet. So lassen sich Quader, unterschiedliche Zylinder und Kegel, aber auch Prismen und Polyeder einfacher eingeben. Die *macro bodies* können problemlos mit zusätzlichen Flächen kombiniert werden.

Flächen, denen kein Bezug zu einer Zelle zugewiesen wird, werden in der Simulation nicht berücksichtigt.

3.3.3. Spezifikationen

Es gibt viele Möglichkeiten die Simulation zu spezifizieren. Die notwendigen und für diese Arbeit verwendeten Spezifikationen werden im Folgenden beschrieben. Die Reihenfolge entspricht der im Anhang dokumentierten Eingabedatei, ist aber für das Programm nicht zwingend.

Materialien

Die Materialien der Zellen können sowohl rein sein als auch Gemische. Die isotopengenaue Definition der verwendeten Elemente ist möglich. Die zu verwendende Datenbank wird für jedes Isotop festgelegt. Der prozentuale Anteil eines Isotops am Material muss angegeben werden.

Quellen

In jeder Eingabedatei darf es nur eine Quellenbeschreibung geben. Diese kann aber beliebig komplex sein und Daten mehrerer Quellen beinhalten. Jede Quelle kann nur eine Art Strahlung emittieren (n , e oder γ). Die Energieverteilung der emittierten Strahlung muss ebenso festgelegt werden wie die räumliche Form und der Ort der Quelle.

Die Quellen sind unabhängig von den verwendeten Materialien und müssen keiner Zelle entsprechen. Es bietet sich jedoch an, eine Quellzelle zu definieren.

¹⁴Auf die Gewichtung wird im Abschnitt *Besondere Möglichkeiten* ab Seite 24 weiter eingegangen.

Simulationsmodus

Die Art der simulierten Teilchen wird über den Modus angegeben. Ein „N“ für Neutronen „P“ für Photonen, „E“ für Elektronen und Positronen. Eine kombinierte Simulation ist möglich. Die Rahmenbedingungen für jeden Modus beschreiben die maximale Energie und welche Wechselwirkungen simuliert werden.

Abbruchbedingung

Damit Simulationen nicht manuell abgebrochen werden müssen, kann festgelegt werden, wann das Ende einer Berechnung erreicht ist. Als Bedingung eignet sich die zu verwendende Rechenzeit oder die Anzahl der zu erzeugenden Teilchen. Bei unterschiedlichen Angaben gilt diejenige, welche zuerst erreicht wird.

Ergebnisse

Welche Informationen als Ergebnis ausgegeben werden sollen, wird durch sogenannte „*Tallies*“ angegeben. Diese sind immer einer Fläche oder Zelle zugeordnet und in der Regel sind die Einheiten auf „pro Startteilchen“ normiert.

Um die Messung eines Gammaskpektrums zu simulieren, wird ein „*Puls High Tally*“ einer Zelle zugeordnet. Die in dieser Zelle deponierte Energie wird in einen Puls umgerechnet. Für den Tally können Energiegruppen definiert werden. Diese entsprechen den Kanälen eines Detektors.

Weitere übliche Arten für Ergebnisse sind Teilchen- oder Energiefluss durch eine Zelle oder Fläche.

Energiebegrenzung

Um keine Rechenzeit auf Teilchen zu verwenden, die für die Fragestellung irrelevant sind, kann eine Mindestenergie definiert werden. Sinkt die Energie eines Teilchens unter diesen Wert, endet der Teilchenpfad sofort.

Zusätzliche Informationen

Die Ausgabedatei enthält standardmäßig die Eingabedaten und daraus resultierende Informationen über die Zellen sowie der verwendeten Datenbanken. Darüber hinaus beinhaltet sie die Ergebnisse zusammen mit einer Angabe der statistischen Abweichungen und einer Analyse des Monte Carlo Verfahrens. Viele Informationen können zusätzlich angezeigt werden.

Sehr hilfreich um festzustellen, ob die Quelle korrekt definiert wurde, sind die Information der ersten 50 startenden Teilchen. Hier werden die Startpunkte, die -energien und -richtungen aufgezeigt.

3.4. Vergleich: Simulationsergebnis und Messung

In seiner Diplomarbeit „*Abrüstungsverifikation: Gammaskpektrometrie für Informationsbarrieren*“ [Wei13] wurden von Martin Weil sowohl das Gammaskpektrum einer Plutoniumprobe gemessen als auch das Verhältnis der Isotope anhand des Alters und der Deklaration der Probe berechnet. Ein Vergleich des Messergebnisses mit Simulationsergebnissen von MCNP5 zeigt, dass die relevanten physikalischen Prozesse korrekt simuliert werden.

Der einzige physikalische Prozess, der zur Messung beiträgt, aber nicht simuliert wird, ist der Summationseffekt. Da jeder Photonenpfad nacheinander simuliert wird und diese sich nicht beeinflussen, kann die gleichzeitige Messung von zwei oder mehr Photonen gleichzeitig nicht

simuliert werden. Abbildung 3.1 zeigt einen Ausschnitt des gemessenen Spektrums, in dem vier *Summationspeaks* (*SUM*) zu erkennen sind. Die Photolinien, können ^{239}Pu zugeordnet werden. Zum Vergleich ist auch derselbe Ausschnitt eines Simulationsergebnisses gezeigt. Im simuliertem Spektrum sind die etwas breiteren Summationspeaks nicht vorhanden. Für diese Simulation wurde der Isotopenvektor der Probe [Wei13], jedoch nicht der komplette Versuchsaufbau der Messung berücksichtigt. Die Energien und Übergangswahrscheinlichkeiten für die Simulation sind [MC11] entnommen. Die Simulationszeit wurde so gewählt, dass ein möglichst genaues Spektrum zu erkennen ist. Daher sind mehr Teilchen detektiert worden als bei der auf 2000 Sekunden beschränkten Messung und das Spektrum ist deutlicher.

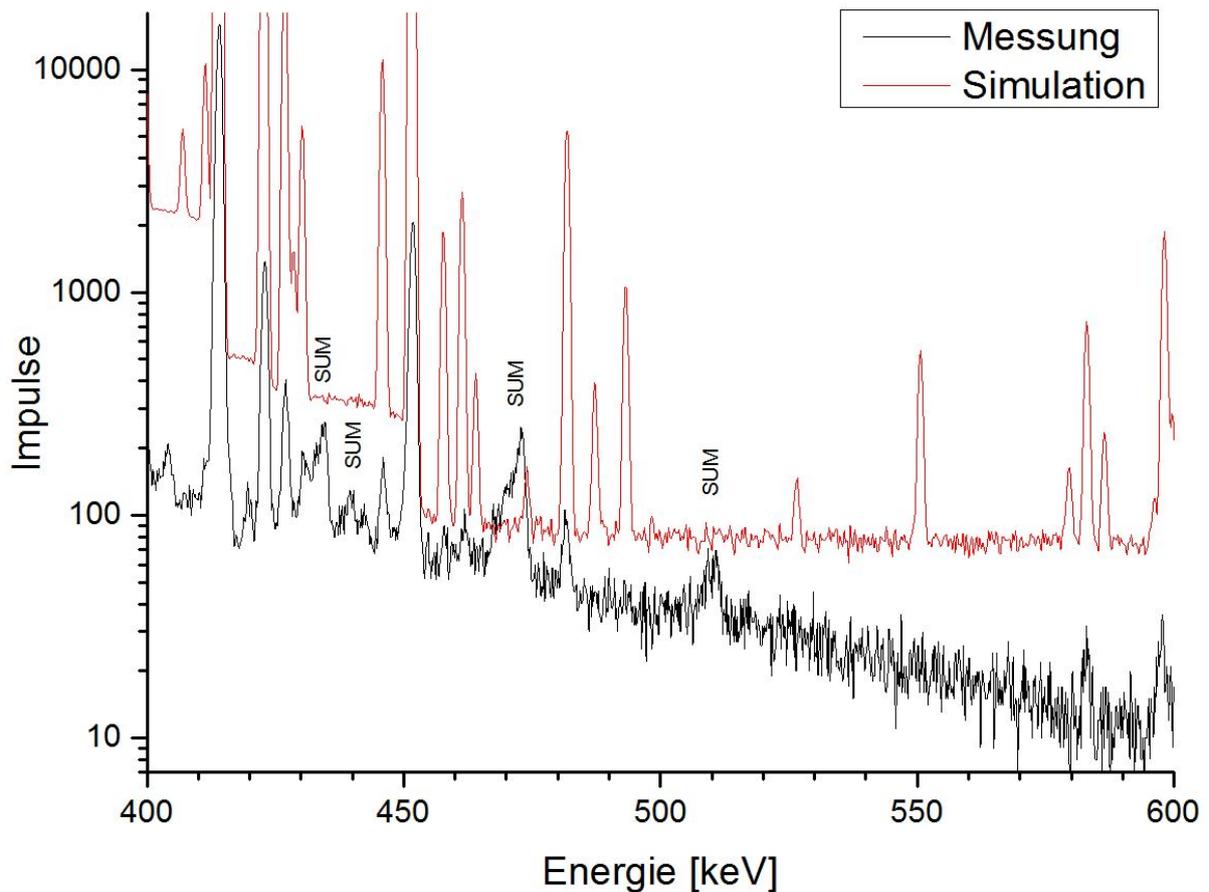


Abb. 3.1.: Vergleich von Messung und Simulation im Energiebereich von 400 keV bis 600 keV mit gekennzeichneten Summationspeaks.

4. Simulationsaufbau

Im Folgenden werden die Annahmen, die den Simulationen zugrunde liegen, erläutert. Danach wird erklärt, welche Möglichkeiten zur Optimierung der Rechenzeit genutzt werden.

4.1. Grundlagen

4.1.1. Die Proben

In einschlägiger Literatur (z.B. [Int08]) wird angenommen, dass Plutonium in Form einer Hohlkugel für ein Bombendesign geeignet ist. Die in dieser Arbeit verwendete Geometrie ist aus [SF90b] übernommen. Es wird von einer Kugelschale mit dem Außenradius von 5 cm , einer Dicke von $0,75\text{ cm}$ und einer Masse von ca. 4 kg ausgegangen. Des Weiteren gilt Plutonium als waffenfähig, wenn der Anteil von ^{239}Pu größer als 93% ist. Für diese Arbeit wird als Isotopenvektor für waffenfähiges Plutonium eine Zusammensetzung aus 95% ^{239}Pu und 5% ^{240}Pu verwendet. Die untersuchten Plutoniumzusammensetzungen die in unterschiedlichen Reaktortypen entstehen sind in Tabelle 4.1 aufgeführt.

Es wird Plutonium aus einem Brennelement, welches aus einem Druckwasserreaktor mit 4% ^{235}U Anfangsanreicherung und 50 GWd/t Abbrand stammt, simuliert. Darüber hinaus wird das Gammaspektrum von Plutonium aus Mischoxidbrennelementen untersucht. Für deren Zusammensetzung wurde eine Mischung aus LWR-Plutonium und Natururan angenommen, mit einem Abbrand von 60 GWd/t . Es wird sowohl das Plutonium aus dem Abbrand eines MOX-Brennelements aus einem Druckwasserreaktor (mit Anfangsanreicherungen Pu_{fiss} von $3,6\%$), als auch aus dem Kern eines Schnellen Brüters (mit einer Anfangsanreicherungen Pu_{gesamt} von $30,281\%$) untersucht.

Für alle Brennelemente wurde je eine Abklingzeit von 7 Jahren angenommen. Die Brennelemente werden im Folgenden mit LWR, DWR(MOX) und Brüter abgekürzt.

	^{238}Pu [%]	^{239}Pu [%]	^{240}Pu [%]	^{241}Pu [%]	^{242}Pu [%]
Waffenfähig	0	95	5	0	0
LWR	3	55,9	22,6	11,8	6,7
DWR(MOX)	2,8	44,2	27,9	15	10,1
Brüter	2,7	53,7	26,3	9,8	7,5

Tab. 4.1.: Zur Erstellung von Referenzspektren verwendete Isotopenvektoren für waffenfähiges Plutonium und Plutonium aus verschiedenen, abgebrannten Brennelementen. Die LWR- und DWR(MOX)-Daten sind entnommen aus [Kir85], die Brüter-Daten aus [Kir13].

4.1.2. Der Detektor

Der simulierte Detektor ist an einen hoch reinen Germaniumdetektor der Firma Canberra angelehnt, einen „Canberra Cryo Pulse 5“. Es handelt sich hierbei um einen elektrisch gekühlten Detektor mit 4096 Kanälen. Mit einem Detektor gleichen Typs hat Weil gearbeitet [Wei13]. Für

die Wechselwirkungen der Photonen, die zu einem Gammaskpektrum führen, ist nur die Geometrie des Detektorkristalls sowie vorhandene Abschirmungen relevant. Die elektronischen Teile des Detektors beeinflussen in der Regel nicht die Wahrscheinlichkeit einer Detektion.

Der Detektor ist mit Aluminium abgeschirmt. Im relevanten Bereich, dem *Fenster*, beträgt die Stärke der Abschirmung $0,5\text{ mm}$. Der Detektor-Kristall befindet sich $4,5\text{ mm}$ hinter dem Fenster. Er hat eine Tiefe von $1,5\text{ cm}$ und einen Durchmesser von $2,55\text{ cm}$. Abbildung 4.1 zeigt eine schematische Darstellung. Die Firma Canberra gibt an, dass Detektoren dieser Größe eine aktive

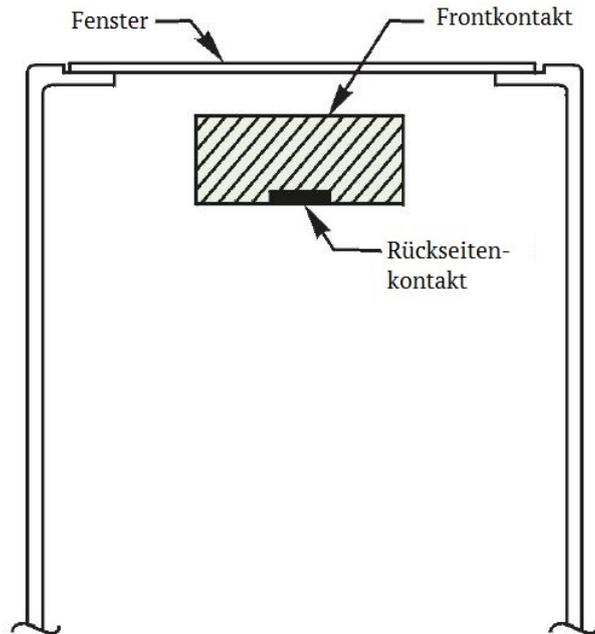


Abb. 4.1.: Schematische Zeichnung eines Detektorkopfes. Mit modifizierter Beschriftung entnommen aus [Can11].

Fläche von 500 mm^2 besitzen. Bei optimaler Installation hat der Detektor bei $5,9\text{ keV}$ eine Halbwertsbreite von 250 eV und bei 122 keV eine Halbwertsbreite von 550 eV .¹⁵ Für den *Cryo-Pulse* wird dieselbe Auflösung angenommen. Aus der Gleichung 3.3 ergibt sich für die Eingabedaten: $a = 0,000165429$; $b = 0,001101$ und $c = 0$. Da ein möglichst vollständiges Gammaskpektrum interpretiert werden soll, verteilen sich die Kanäle auf den Energiebereich 0 keV bis $1,2\text{ MeV}$. Die Energiebreite der Kanäle sollte konstant sein. Bei der Kontrolle der Ausgabedatei zeigt sich überraschenderweise, dass die Breite zwischen $0,2\text{ keV}$ und $0,3\text{ keV}$ schwankt. Der Mittelwert ist:

$$\frac{\text{Energie}}{\text{Kanal}} = (0,292725 \pm 1,8 \times 10^{-6})\text{ keV} \quad (4.1)$$

Die Simulationen entsprechen einem vereinfachten Messaufbau. Da es keinen standardisierten Verfahren gibt, wurde der Abstand zwischen Detektor und Probe auf 5 cm festgelegt. Zwischen Detektor und Probe befindet sich keine weitere Abschirmung. Eine Illustration des Simulationsaufbaus ist auf Seite 29 zu finden.

¹⁵Daten für diese Detektorgröße gibt es nur mit einem Beryllium - Fenster der Dicke $0,15(5)\text{ mm}$ [Can11]. Dies hat keine Auswirkungen für die Simulation.

4.2. Verwendete Eingabedaten

4.2.1. Materialspezifikationen

Für die Simulationen wurde als Dichte für metallisches Plutonium $19,816 \text{ g/cm}^3$ verwendet. Die Dichte für reines Aluminium ist $2,7 \text{ g/cm}^3$ und für reines Germanium $5,323 \text{ g/cm}^3$. Luft wurde als ein Gemisch aus Stickstoff (80 %) und Sauerstoff (20 %) mit einer Dichte von $0,0012 \text{ g/cm}^3$ definiert.

4.2.2. Berechnung der Strahlung

In der Beschreibung der Quelle muss angegeben werden, welche Strahlung mit welcher Wahrscheinlichkeit emittiert werden soll. Die relative Emissionswahrscheinlichkeit der unterschiedlichen Photonen muss also ermittelt und angegeben werden.

Mit Formel 2.3 kann die Anzahl der Zerfälle eines Isotops pro Sekunde und pro Gramm berechnet werden. In Tabelle 4.2 sind die, mit Daten aus [AS09] berechneten, spezifischen Aktivitäten der Plutoniumisotope aufgeführt, die für diese Arbeit relevant sind.

Isotop	$T_{1/2} [s]$	$m [u]$	$A_{iso} [\text{Bq } g^{-1}]$
Pu-238	$2,768 \times 10^9 \pm 9,5 \times 10^6$	238,050	$6,336 \times 10^{11} \pm 7,9 \times 10^8$
Pu-239	$7,609 \times 10^{11} \pm 3,5 \times 10^8$	239,050	$2,295 \times 10^9 \pm 3,1 \times 10^6$
Pu-240	$2,071 \times 10^{11} \pm 1,6 \times 10^8$	240,054	$8,396 \times 10^9 \pm 7,7 \times 10^6$
Pu-241	$4,522 \times 10^8 \pm 1,3 \times 10^6$	241,059	$3,829 \times 10^{12} \pm 1,1 \times 10^{10}$
Pu-242	$1,787 \times 10^{13} \pm 3,5 \times 10^{10}$	242,058	$1,463 \times 10^8 \pm 4,4 \times 10^5$

Tab. 4.2.: Spezifische Aktivitäten A_{iso} der relevanten Plutoniumisotope. Die Ungenauigkeit der Massenzahl beträgt $\Delta_m = 0,005$.

Ist das Gesamtgewicht (M) und die Isotopenverteilung einer Probe bekannt, kann die Anzahl der Photonen eines charakteristischen Übergangs berechnet werden, die pro Sekunde emittiert werden. Die Emissionsstärke einer Linie ($N_{\gamma,em}$) ist:

$$N_{\gamma,em} = M \cdot M_{iso} \cdot A_{iso} \cdot P_{abs} \quad (4.2)$$

A_{iso} ist die spezifische Aktivität, M_{iso} der prozentuale Massenanteil des Isotops und P_{abs} die absolute Emissionswahrscheinlichkeit pro Zerfall.

Für diese Arbeit wurden die Daten der Gammalinien aus der JEFF 3.1.1 (JEFF) und aus der ENDF/B-VII.1 (ENDF) Datenbank extrahiert und je mit einem Mathematica Skript für die MCNP-Eingabedatei aufbereitet. Um eine möglichst übersichtliche Eingabedatei zu erstellen, wurden die Emissionsstärken verringert:

$$P_{MCNP} = N_{\gamma,em} \cdot 10^{-5} \quad (4.3)$$

Dies hat keinen Einfluss auf die Ergebnisse der Simulation, da für MCNP nur die relativen Emissionswahrscheinlichkeiten relevant sind.

Für viele Gammalinien sind die Daten der Datenbanken ähnlich bis identisch und sie stimmen auch mit älteren Datenbanken (z.B. [LSB78]) überein. Es gibt jedoch Übergänge, die ausschließlich in einer Datenbank zu finden sind. Dadurch kommt es zu unterschiedlichen Simulationsergebnissen. Ein gravierender Unterschied für das ^{239}Pu -Spektrum ist in Abbildung 4.2 dargelegt.

Das auf der JEFF Datenbank [AS09] basierende Simulationsergebnis zeigt starke Linien bei ca. 485 keV und bei ca. 545 keV . Diese sind weder durch die Messung, noch durch andere Datenbanken verifizierbar. Die JEFF Datenbank ist anscheinend teilweise fehlerhaft.

Da keine so starken Abweichungen zur Messung im Simulationsergebnis, basierend auf ENDF Daten [MC11], gefunden wurden, sind die im Kapitel 5 ab Seite 30 diskutierten Simulationsergebnisse auf Grundlage der ENDF-Datenbank entstanden.

In der Abbildung 4.2 sind weiterhin Linien erkennbar, die in beiden Datenbanken vorhanden, aber nicht in der Messung erkennbar sind (z.B. bei 493 keV und 550 keV). Diese Linien weisen jedoch weniger auf einen Fehler in der Simulation bzw. Datenbank hin, als auf eine zu geringe Messzeit.

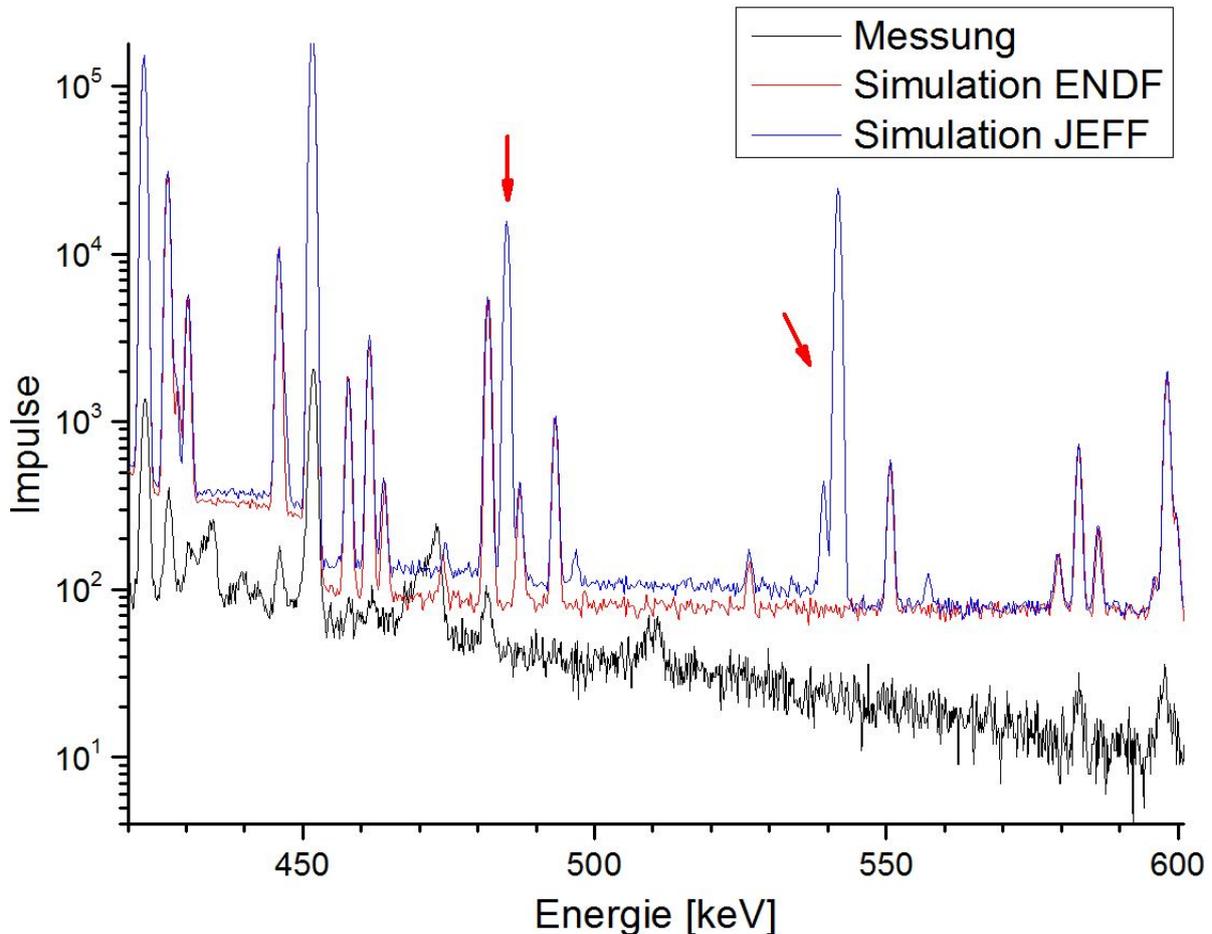


Abb. 4.2.: Vergleich der Messung [Wei13] mit einem Simulationsergebnis; Energiebereich 420 keV bis 600 keV . Markiert sind Linien, die ausschließlich in der JEFF-Datenbank vorhanden sind.

4.2.3. Optimierung der Rechenzeit / Varianzreduktion

Der benötigte Zeitaufwand für die Simulation ist von der gewünschten Teilchenanzahl und der Computerleistung abhängig. Da sowohl Zeit als auch Computerleistung nicht unbegrenzt zur Verfügung stehen, ist es notwendig den Rechenaufwand zu verringern. So kann die Quantität der Simulation um mehrere Größenordnungen verbessert werden. Da bei konstant gehaltener Rechenzeit die statistischen Unsicherheiten hierdurch verringert werden, wird der Vorgang auch als *Varianzreduktion* betitelt.

Die Varianzreduktion ist für die Simulation einer gammaspektrometrischen Messung relevant, da die Anzahl der Teilchen, die detektiert werden, sehr groß sein muss, um das Spektrum

auswerten zu können. Ausgehend von einer Kugelschale *waffenfähigen* Plutoniums mit Außenradius 5 cm und einer Dicke von $0,75\text{ cm}$ wurden verschiedene Simulationen durchgeführt, um Einstellungen für eine effektive Optimierung zu bestimmen. Verglichen wird die Anzahl der detektierten Teilchen ($N_{\gamma,det}$) bei einer Simulationsdauer von 900 min . Diese Zeit reicht nicht aus, um ein verwertbares Gammaskpektrum zu erhalten. Aber Durchschnittswerte, wie zum Beispiel die Wahrscheinlichkeit, dass ein Teilchen im Detektor detektiert wird, sind sehr genau berechnet.

Elektronentransport

Die Simulation geladener Teilchen ist im Vergleich zur Gammatransportsimulation aufwändiger. Da sie von den elektrischen Feldern der Atome beeinflusst werden, müssen für Elektronen viel mehr Wechselwirkungen pro Strecke simuliert werden als für Photonen. Um die Rechenzeit zu verringern, gibt es bei MCNP die Möglichkeit den Elektronentransport zu deaktivieren. Dies führt dazu, dass die Pfade der Elektronen und Positronen sofort enden und die kinetische Energie in der unmittelbaren Umgebung des Entstehungspunkts deponiert wird. Photonen, die bei einer Annihilation entstehen, starten somit bei dem Startpunkt des Positrons. Der Effekt auf die Rechenzeit ist in Tabelle 4.3 zu erkennen. In einer kombinierten Simulation von Photonen und Elektronen (Modus P E) ist die benötigte Simulationszeit für ein Startteilchen deutlich länger als mit ausgeschaltetem Elektronentransport (Modus P). Die Anzahl der Startteilchen pro Sekunde ($N_{\gamma,start}/s$) und die Summe der detektierten Teilchen steigen fast um Faktor 200.

	$N_{\gamma,start}/s$	$N_{\gamma,det}$
Modus P E	$1,1164 \times 10^5$	$2,57 \times 10^3 \pm 51$
Modus P	$2,1738 \times 10^7$	$5,2 \times 10^5 \pm 730$

Tab. 4.3.: Anzahl simulierter Photonen pro Sekunde und Summe der Photonen, die in 900 min Simulationszeit Energie im Detektor deponieren; sowohl mit als auch ohne Berechnung der Elektronentransporte.

Bei derselben Anzahl von simulierten Teilchen wird bei beiden Modi ein vergleichbares Spektrum ausgegeben, da die Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron das Detektormaterial verlässt, gering ist. Daher wurde für diese Arbeit der Elektronentransport deaktiviert.

Besondere Möglichkeiten

In MCNP gibt es viele Verfahren, den Rechenaufwand zu verringern. Diese zielen darauf ab, mehr Simulationen in *wichtigen* Bereichen durchzuführen und die Anzahl der *unwichtigen* Simulationen zu minimieren. Hierbei wird oft ausgenutzt, dass simulierte Teilchen nicht einzelnen (realen/physikalischen) Teilchen entsprechen müssen. Den Teilchen kann ein „Gewicht“ (ω) zugeordnet werden. Wird ein Teilchen detektiert, wird das Ergebnis mit ω multipliziert, um die Anzahl der detektierbaren physikalischen Teilchen zu erhalten.

Die Funktionsweise dieser Möglichkeit lässt sich an der **geometrischen Gewichtung** bzw. *geometrischen Zerteilung* gut verdeutlichen, wie es u.a. in [E.D75] erklärt wird:

Zunächst wird der Simulationsraum in wichtige und weniger wichtige Gebiete unterteilt. Grundsätzlich steigt die Wichtigkeit mit der Nähe zum Detektor. Zum Beispiel können innerhalb einer Abschirmung zwei Bereiche mit der Wichtigkeit ρ bzw. τ definiert werden. Sei $\rho < \tau$ und $\tau/\rho = p$. Beim Übergang in den wichtigeren Bereich wird ein Teilchen in n oder $(n+1)$ ganzzahlige Teilchen mit je einem Gewicht von ω/n bzw. $\omega/(n+1)$ geteilt.¹⁶ Diese Teilchen haben die

¹⁶ ω ist hier entsprechend das Gewicht des Teilchens vor der „Spaltung“.

identische Energie und Geschwindigkeit wie das ursprüngliche Teilchen. Es gilt: $n \leq p \leq n + 1$. Und mit der Wahrscheinlichkeit $p - n$ entstehen bei der Teilung $(n+1)$ Teilchen. Beim entgegengesetzten Übergang endet der Teilchenpfad mit der Wahrscheinlichkeit $1 - 1/p$. Überlebt das Teilchen, wird das Gewicht um den Faktor p erhöht. Hierdurch soll kompensiert werden, dass die Information der Teilchen komplett verloren geht.

Diese Methode ist ebenso anwendbar für (un)wichtige Energien und zur Festlegung von Gewichts- oder Simulationszeitgrenzen.

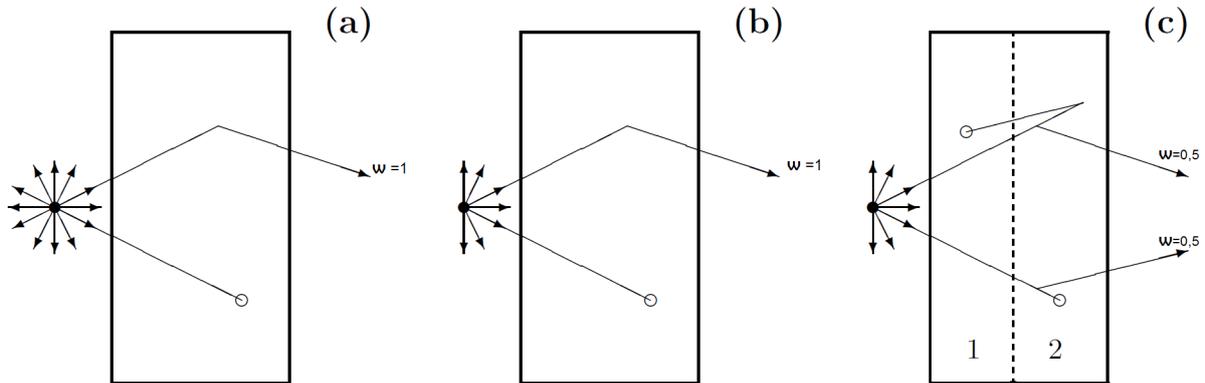


Abb. 4.3.: Beispiele für Varianzreduktion. Entnommen aus [JKS01], modifiziert mit dem jeweiligen Gewicht (ω) der gemessenen Photonen.

In Abbildung 4.3 wird das Prinzip illustriert. Untersucht wird die Strahlung einer monoenergetischen Punktquelle hinter einer Abschirmung. Bei einer Standardsimulation (a) entstehen viele Teilchen, die keine Rolle für die Fragestellung spielen. Diese Anzahl kann reduziert werden, indem die Startrichtung der Teilchen eingeschränkt wird (b). Die Abschirmung kann überdies in zwei gleichgroße Bereiche geteilt und die *Wichtigkeit* von Bereich 2 als doppelt so groß wie in Bereich 1 definiert werden. Beim Übergang zu Bereich 2 entstehen für jedes Teilchen zwei Teilchen mit jeweils halbiertem Gewicht. So werden doppelt so viele Teilchen wie ursprünglich in Bereich 2 simuliert. In der Grafik wird der mögliche Weg für zwei Teilchen illustriert. Bei diesem einfachen Beispiel wird deutlich, dass als Ergebnis bei jeder Simulation im Gesamt ein Photon hinter der Abschirmung ankommt. Aber ein Detektor wird im Falle (c) zwei Teilchen mit entsprechender Energie und entsprechendem Gewicht registrieren. So kann eine genauere Abschätzung der Energieverteilung der im Detektor deponierten Energie berechnet werden. Dies ist vor allem relevant, wenn die Zählraten niedrig sind und in unmodifizierten Simulationen häufig 0 Photonen detektiert werden. Der Unterschied wird im Vergleich zwischen den Abbildungen 4.4a und 4.4c sichtbar. Durch die Verwendung der geometrischen Gewichtung ist nach 900 *min* Simulationszeit der Untergrund vor allem oberhalb von 430 *keV* deutlicher von den Linien zu trennen.

Abgesehen von der Möglichkeit, alle Teilchen in eine bestimmte Richtung starten zu lassen, gibt es die Option der **Richtungsbeeinflussung**: Es wird ein bevorzugter Richtungsvektor definiert. Der Winkel zwischen diesem Vektor und der zufälligen Startrichtung eines Teilchens sei θ . Um Rechenzeit auf die Teilchen zu fokussieren, die in die bevorzugte Richtung starten, kann für die Wahrscheinlichkeit des Startvektors eine Abhängigkeit von $\mu = \cos\theta$ festgelegt werden:

$$p(\mu) = C e^{K\mu} \quad (4.4)$$

Mit der Normierungskonstante $C = \frac{K}{e^K - e^{-K}}$. Der Parameter K wird vom Nutzer der Software festgelegt. Unwahrscheinliche Startteilchen bekommen eine höhere Gewichtung. Bei $K = 3,5$ starten 50 % der Pfade in einem Kegel mit dem Öffnungswinkel von 37° . Das Gewicht eines Teilchens, dessen Startvektor um 53° verschoben ist, entspricht dem 0,569 fachen des ursprünglichen

Gewichtes. Die Konsequenz für das Simulationsergebnis wird im Vergleich der Abbildungen 4.4a-c deutlich. Die Trennung zwischen Linien und Untergrund sind noch deutlicher, als mit Hilfe der geometrischen Gewichtung.

Bei zu starkem Einsatz der Möglichkeiten werden in einzelnen Kanälen überdurchschnittlich viele Teilchen gezählt, weil ein MCNP- Teilchen mit sehr großem Gewicht gemessen wird. Hierdurch kommt es bei beliebigen Energien zu Linien, die nur einen Kanal breit sind und die eine Interpretation des Spektrums deutlich erschweren. Dies ist in Abbildung 4.4d markiert.

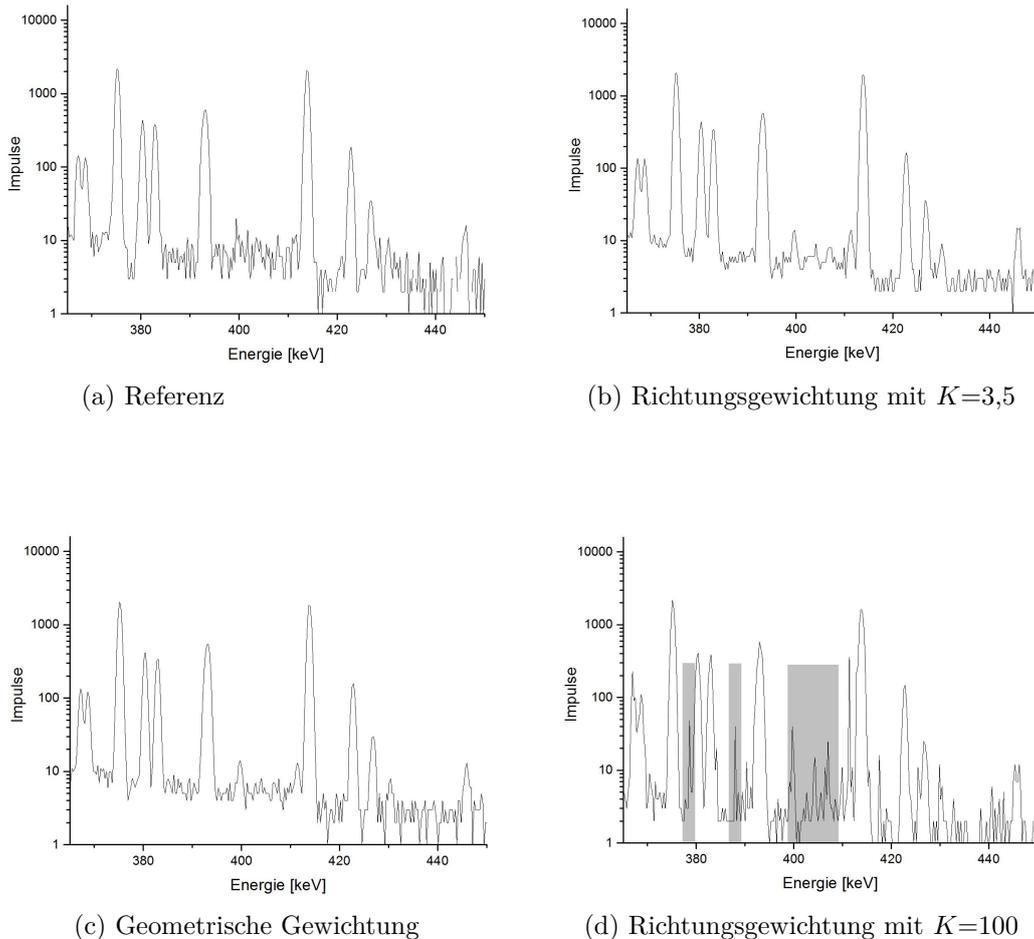


Abb. 4.4.: Auswirkungen von Gewichtungseinstellungen auf das Simulationsergebnis im Energiebereich 375 keV bis 450 keV . Exemplarisch hervorgehoben sind Maxima, die ausschließlich bei starker Richtungsgewichtung auftreten.

Bei korrekter Anwendung der Gewichtungsfunktionen wird ein Großteil der Rechenzeit für Photonen verwendet, die eine relevante Chance haben, Energie im Detektor zu deponieren. Durch die Gewichtungsfaktoren sind die durchschnittlichen Teilchenflüsse durch die Oberflächen oder Zellen bei allen Einstellungen identisch. Für die Simulation von Gammaspektren sind diese Möglichkeiten sinnvoll, da die Linien im Spektrum bei derselben Simulationsdauer deutlicher vom Untergrund zu unterscheiden sind.

Gleichzeitig sinkt die Anzahl der Startteilchen pro Sekunde bei Verwendung von Gewichtungsfunktionen. In Abbildung 4.4 und in Tabelle 4.4 sind einige Resultate von Richtungsbeeinflussung (mit $K=3,5$ und $K=100$) sowie von geometrischer Zerteilung aufgeführt. Für letzteres wurde

die Wichtigkeit (*imp*) der Zellen jeweils um zwei erhöht, je näher sie am Detektor liegt.¹⁷ Die Aufteilung kann beliebig variiert werden. Es konnte jedoch keine Einstellung gefunden werden, die eine deutliche Verbesserung des Ergebnisses produziert.¹⁸

	$N_{\gamma,start}/s$	$N_{\gamma,det}$
Ohne Einstellung	$2,1738 \times 10^7$	$5,20 \times 10^5 \pm 7,3 \times 10^2$
Mit Richtungsbeeinflussung, $K=3,5$	$2,0802 \times 10^7$	$4,95 \times 10^5 \pm 1,1 \times 10^3$
Mit starker Richtungsbeeinflussung, $K=100$	$2,0579 \times 10^7$	$4,07 \times 10^5 \pm 1,9 \times 10^4$
Mit geometrische Gewichtung	$1,9817 \times 10^7$	$4,74 \times 10^5 \pm 7,6 \times 10^2$

Tab. 4.4.: Auswirkungen von Gewichtungseinstellungen auf die Anzahl simulierter Teilchen pro Sekunde und auf die Summe der detektierten Teilchen.

Auch wenn sämtliche gewichtsverändernde Funktionen mit der Simulation von Gammaskpektren kompatibel sind (vergl. [JSH05]), können Informationen verloren gehen, indem aus bestimmten Richtungen die Strahlung zu stark reduziert wird. Um diesen Fehler gering zu halten, wurde für alle weiteren Simulationen ausschließlich die Möglichkeit der Richtungsbeeinflussung mit $K=3,5$ gewählt.

Vereinfachungen der Simulation

Je detaillierter der Simulationsraum ist, desto häufiger werden Prozesse simuliert, die keinen relevanten Beitrag zum Ergebnis liefern. Deswegen ist es ratsam, nur das Wesentliche eines möglichen Messaufbaus zu simulieren und Pfade, die definitiv nicht in den Detektor führen, frühzeitig zu beenden.

Aus den im Abschnitt 2.2 erläuterten Gründen, kommt es bei Plutoniumproben ($Z=94$) zu starken Selbstabschirmungseffekten: Ein Großteil der Gammastrahlung wird innerhalb des Plutoniums absorbiert und kann nicht gemessen werden. Die Wahrscheinlichkeit für ein einzelnes Photon, die Probe zu verlassen, ist abhängig von seiner Energie und der Strecke, welche es im Plutonium zurücklegen muss. Im Mittel ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Teilchen die Plutoniumhohlkugel verlässt, 0,65 %. Nur eines von $4,3(2) \cdot 10^4$ Teilchen kommt im Detektor an und deponiert dort Energie.

Um dieses Verhältnis zu verbessern, wurde der Effekt verschiedener Vereinfachungen untersucht. Zusammenfassungen der Ergebnisse sind in Tabelle 4.5 und 4.6 aufgeführt. Eine Skizze des resultierenden Simulationsraumes ist in Abbildung 4.5 gegeben.

Unter anderem wurde getestet, in welchen Anteilen des Plutoniumvolumens Photonen starten, die nur in unwahrscheinlichen Fällen detektiert werden.

Dafür wurde zunächst die Kugelschale in zwei Zellen geteilt. Die *obere* Hälfte, die näher am Detektor ist, schirmt die Photonen, die in der *unteren* Hälfte starten ab. Jeweils eine der Hälften wurde als Quelle (mit angepassten Emissionswahrscheinlichkeiten) definiert. Bei identischer Simulationszeit (900 *min*) zeigt sich, dass der Beitrag der unteren Hälfte zu einem Gammaskpektrum marginal ist, da

$$\frac{N_{\gamma,det}(unten)}{N_{\gamma,det}(oben)} < 0,4 \% .$$

Für eine weiter unten diskutierte Ausnahme ist das Verhältnis $< 4\%$. Wird die Quelle auf die obere Hälfte begrenzt, deponieren in 900 *min* Rechenzeit fast doppelt so viele Photonen Ener-

¹⁷Quellzelle: *imp*=1; Luft zwischen Plutonium und Detektorabschirmung: *imp*=2; Detektorabschirmung: *imp*=4; Luft zwischen Abschirmung und Detektorkristall: *imp*=6; Detektorkristall: *imp*=8.

¹⁸Die geometrische Gewichtung funktioniert deutlich besser bei Punktquellen.

gie im Detektor, wie bei der Referenzsimulation. Durch diese Vereinfachung kann also knapp der Faktor zwei an Rechenzeit gespart werden, ohne dass das Simulationsergebnis qualitativ schlechter wird.

Eine weitere Möglichkeit, die aufzuwenden Rechenzeiten um den Faktor zwei zu reduzieren, ist die Verringerung der Plutoniummasse auf 1 kg . Hierdurch sinkt die Dicke der Kugelschale auf $0,3445\text{ cm}$ und innerhalb von 900 min Simulationszeit, deponieren doppelt so viele Photonen Energie im Detekorkristall.

Abgesehen von der Einschränkung der Quellengeometrie, führt die Festlegung einer Mindestenergie zu einer Reduzierung der Rechenzeit. Wird $E_{min} = 123\text{ keV}$ festgelegt, sinkt die Anzahl der simulierten Photonen, die wegen der Selbstabschirmung nicht in den Detektor gelangen. Gleichzeitig wird durch diese Energieschwelle auch sämtliche charakteristische Röntgenstrahlung verhindert. In den Simulationsergebnissen wird deutlich, dass durch festsetzen einer Mindestenergie zwar pro Sekunde weniger Photonen simuliert werden, aber deutlich mehr Teilchen detektiert werden. Die benötigte Rechenzeit sinkt um einen Faktor drei bis vier.

Die Kombination der verschiedenen Möglichkeiten führt zum erwähnten Verhältnis $\frac{N_{\gamma, det}(unten)}{N_{\gamma, det}(oben)} < 4\%$, bei einer Kugelschale aus ca. 1 kg Plutonium und $E_{min} = 123\text{ keV}$.

Als Konsequenz der in diesem Kapitel dargelegten Überlegungen und Simulationen wird für die zu untersuchenden Gammaspectren der Simulationsraum gewählt, wie in Abbildung 4.5 dargestellt:

- Eine halbe Hohlkugel aus ca. 1 kg Plutonium mit dem Außenradius 5 cm .
- Ein mit Aluminium abgeschirmter zylindrischer Germaniumkristall mit einem Durchmesser von $25,5\text{ mm}$.
- Die Simulationen berücksichtigen weder die Elektronenpfade noch Photonen mit Energien unterhalb von 123 keV .

	$E_{min} [\text{keV}]$	$N_{\gamma, start}/s$	$N_{\gamma, det}$
Referenz	0	$2,1738 \times 10^7$	$5,20 \times 10^5 \pm 7,3 \times 10^2$
	123	$1,301 \times 10^7$	$1,85 \times 10^6 \pm 2,2 \times 10^3$
oben	0	$1,9255 \times 10^7$	$9,19 \times 10^5 \pm 1,6 \times 10^3$
	123	$1,2402 \times 10^7$	$3,52 \times 10^6 \pm 3,2 \times 10^3$
unten	0	$1,916 \times 10^7$	$3,66 \times 10^3 \pm 2,6 \times 10^1$
	123	$1,2283 \times 10^7$	$1,71 \times 10^4 \pm 5,6 \times 10^1$

Tab. 4.5.: Effekte der Begrenzung der Mindestenergie auf 123 keV und der Vergleich der Beiträge der oberen und unteren Kugelschalenhälfte, Referenzmasse 4 kg .

	$E_{min} [keV]$	$N_{\gamma,start}/s$	$N_{\gamma,det}$
Referenz	0	$2,0582 \times 10^7$	$1,06 \times 10^6 \pm 1,6 \times 10^3$
	123	$1,2748 \times 10^7$	$3,9 \times 10^6 \pm 3,1 \times 10^3$
oben	0	$1,9118 \times 10^7$	$1,9 \times 10^6 \pm 2,1 \times 10^3$
	123	$1,227 \times 10^7$	$7,21 \times 10^6 \pm 4,3 \times 10^3$
unten	0	$1,9177 \times 10^7$	$6,67 \times 10^4 \pm 1,1 \times 10^2$
	123	$1,1856 \times 10^7$	$2,99 \times 10^5 \pm 2,4 \times 10^2$

Tab. 4.6.: Effekte der Begrenzung der Mindestenergie auf 123 keV und der Vergleich der Beiträge der oberen und unteren Kugelschalenhälfte, Referenzmasse 2kg.

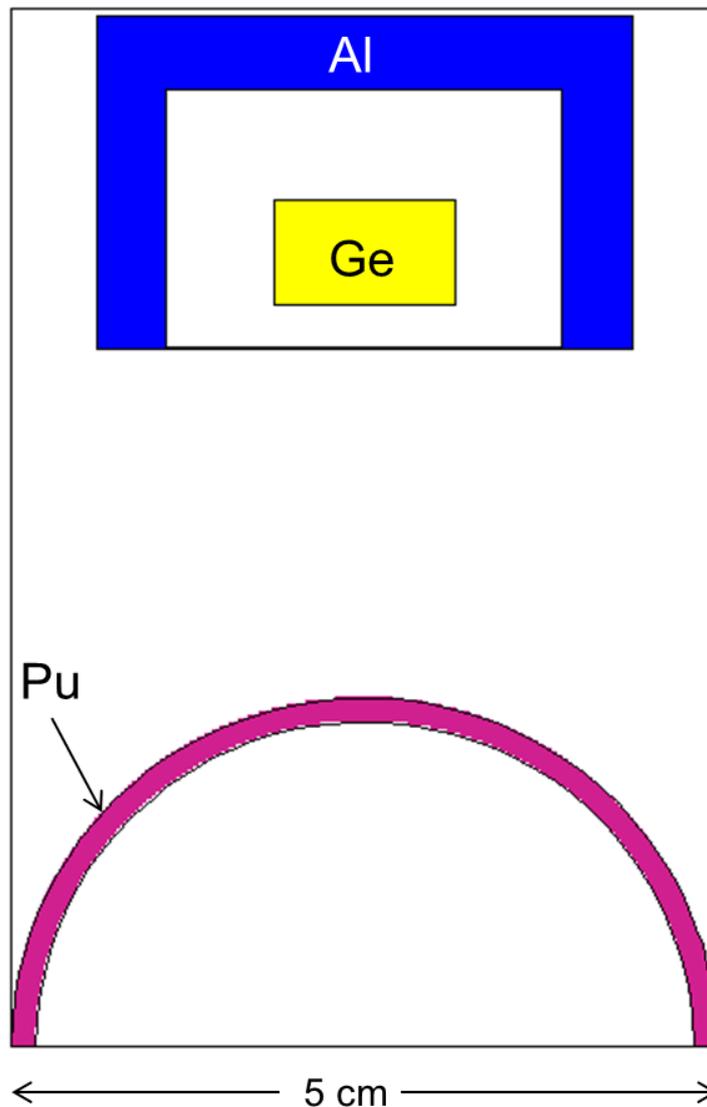


Abb. 4.5.: Querschnitt des verwendeten Simulationsaufbaus. Zwischen den beschrifteten Materialien und innerhalb der Begrenzung ist Luft.

5. Simulationsergebnisse

Mit dem vorgestellten Programm MCNP 5 und den im vorherigen Kapitel beschriebenen Eingaben wurden Messungen von Gammastrahlung verschiedener Plutoniumproben simuliert. Das Simulationsergebnis für waffenfähiges Plutonium weist gute Übereinstimmung mit dem von Weil gemessenen Spektrum auf.

Alle simulierten Gammaspektren wurden analysiert und der jeweilige Isotopenvektor bestimmt. Für die Analyse eines Gammaspektrums müssen die Photolinien im Spektrum identifiziert und deren Flächeninhalt bestimmt werden. Hierfür wurde zunächst das Simulationsergebnis mit dem Programm *OriginPro 9.0* graphisch aufbereitet.

5.1. Isotopenidentifikation

Für jede erkennbare Linie wurde die Energie bestimmt. Hierfür ist die Gauß-Fit-Funktion von OriginPro nützlich. Mit diesem Hilfsmittel wurde der Erwartungswert jedes Maximums berechnet. Anhand dieser Information kann jeder Linie im Idealfall ein charakteristischer Gammaübergang (bzw. eine Gamma-Linie) und somit ein Isotop zugeordnet werden. Hierfür muss das Analyseergebnis mit einer entsprechenden Datenbank verglichen werden. Da die Informationen über Energie und Emissionswahrscheinlichkeit jeder Linie zur Berechnung der Eingabedaten verwendet wurden, bietet sich an, diese als zusätzliche Referenz zu verwenden.

Es zeigt sich, dass die Bestimmung der Energie eine systematische Abweichung von $0,1\text{ keV}$ bis $0,2\text{ keV}$ aufweist. Die Abweichung resultiert wahrscheinlich durch die Fit-Funktion von OriginPro.

Überlagern sich mehrere Linien, ist eine eindeutige Zuordnung nicht ohne Weiteres möglich. In diesem Fall werden dem *Peak* alle Linien der entsprechenden Energie zugeordnet, deren Emissionsstärke¹⁹ groß genug ist, dass ihr Beitrag über den Untergrund deutlich wird. Die Mindestemissionsstärke wird durch den am schwächsten ausgeprägten Peak, im Energiebereich mit vergleichbar starkem Untergrund, definiert. Beiträge von Linien mit geringerer Emissionswahrscheinlichkeit werden dem Untergrund zugeordnet.

Die Wahrscheinlichkeit für die Detektion von Photonen mit Energie über 660 keV ist bei waffenfähigem Plutonium so gering, dass eine Simulationszeit von 900 min (bzw. eine Simulation von $1,1 \cdot 10^{10}$ Teilchenpfaden) nicht ausreicht, um ein Spektrum zu erhalten, in dem dieser Energiebereich untersucht werden kann. In Abbildung 5.1 ist das Problem veranschaulicht. Ab 635 keV verschwindet der Untergrund teilweise, die Zählrate ist in diesem Energiebereich zu niedrig, um das Spektrum korrekt analysieren zu können.

Deswegen wurde die Anzahl der Teilchenpfade auf $5 \cdot 10^{10}$ erhöht.

¹⁹siehe Formeln 4.2 und 4.3

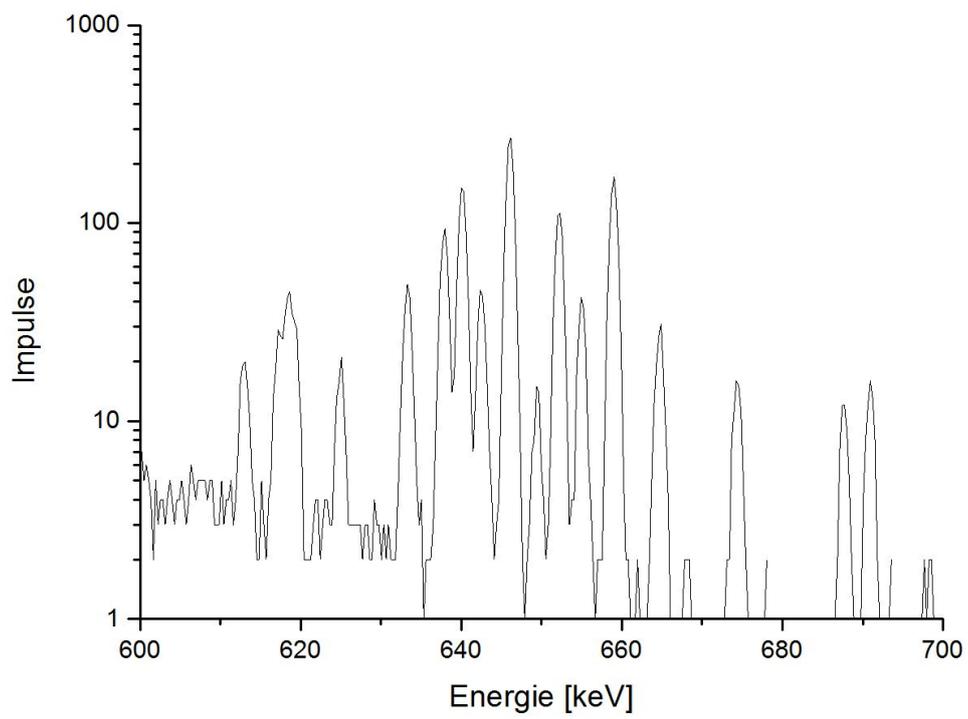


Abb. 5.1.: Ausschnitt des Simulationsergebnisses für waffenfähiges Plutonium mit einer Simulationszeit von 900 *min.* Energiebereich 500 *keV* bis 700 *keV*.

5.1.1. Waffenfähiges Plutonium

In Abbildung 5.2 ist das Simulationsergebnis für waffenfähiges Plutonium (95 % ^{239}Pu und 5 % ^{240}Pu) dargestellt. Für eine übersichtliche Erläuterung ist es in fünf Bereiche aufgeteilt. Diese Aufteilung ist so gewählt, dass in einem Abschnitt der Verlauf des Untergrunds halbwegs linear verläuft. Es gibt sehr starke Linien mit über 10^5 Impulsen. Im oberen Energiebereich (ab 650 keV), in dem der Untergrund nicht so stark ist, sind auch Linien mit einigen Dutzenden Impulsen erkennbar.

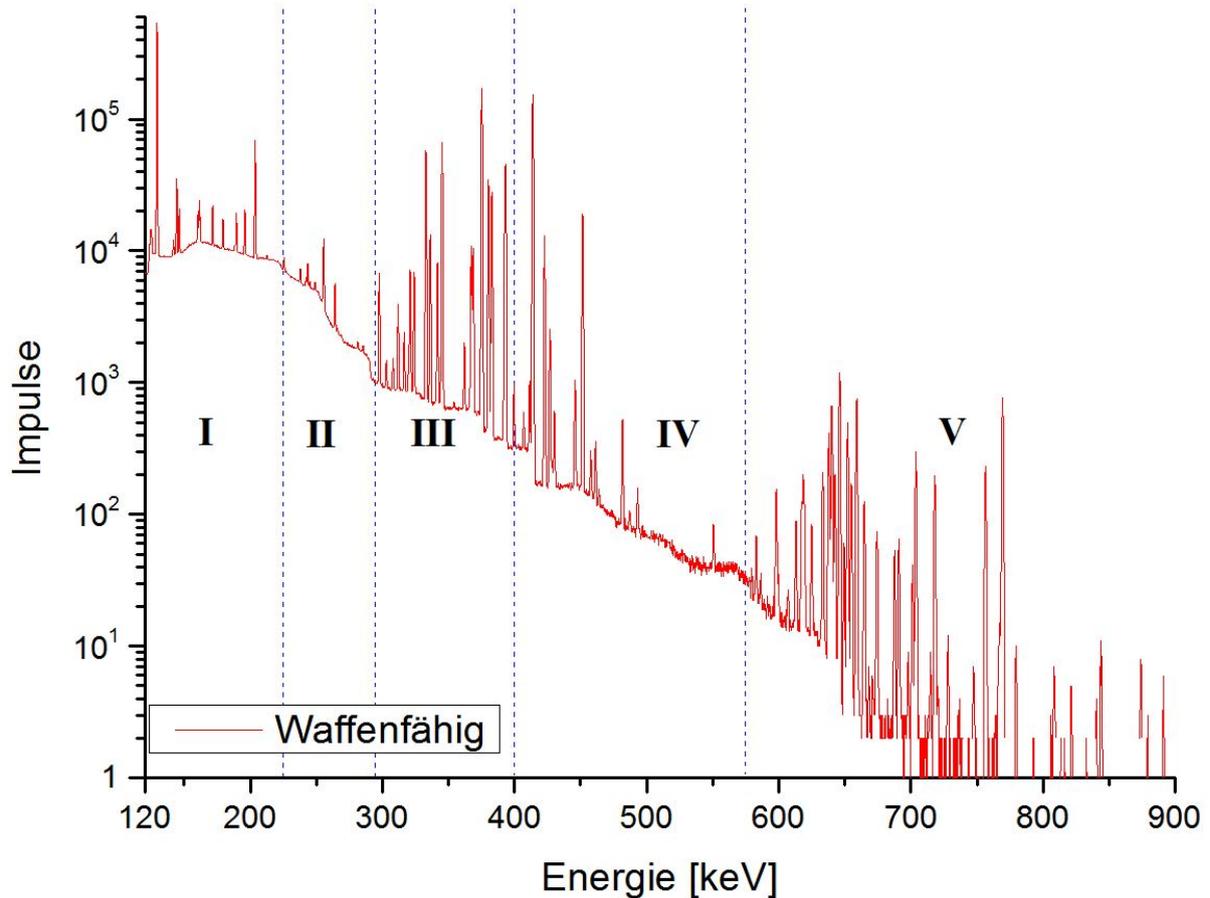


Abb. 5.2.: Gammaspektrum von waffenfähigem Plutonium, Energiebereich 123 keV bis 900 keV . Für eine übersichtliche Beschreibung wurde das Spektrum in fünf Energiebereiche geteilt.

Im **Energiebereich I** (123 keV bis 225 keV) ist der Untergrund so stark, dass sich nur Gammalinien vom Untergrund abheben, für deren Emissionsstärke gilt:

$$P_{MCNP} \geq 120.$$

Wie in Abbildung 5.3 markiert und in Tabelle 5.1 zusammengefasst, können in diesem Bereich 10 Linien des ^{239}Pu -Zerfalls und zwei des ^{240}Pu -Zerfalls identifiziert werden.

Die Identifizierung von ^{240}Pu ist in diesem Bereich erschwert, da die Linie bei $160,5\text{ keV}$ von einer ^{239}Pu Linie teilweise überlagert wird und die Linie bei $212,6\text{ keV}$ fast zu schwach ist, um erkennbar zu sein.

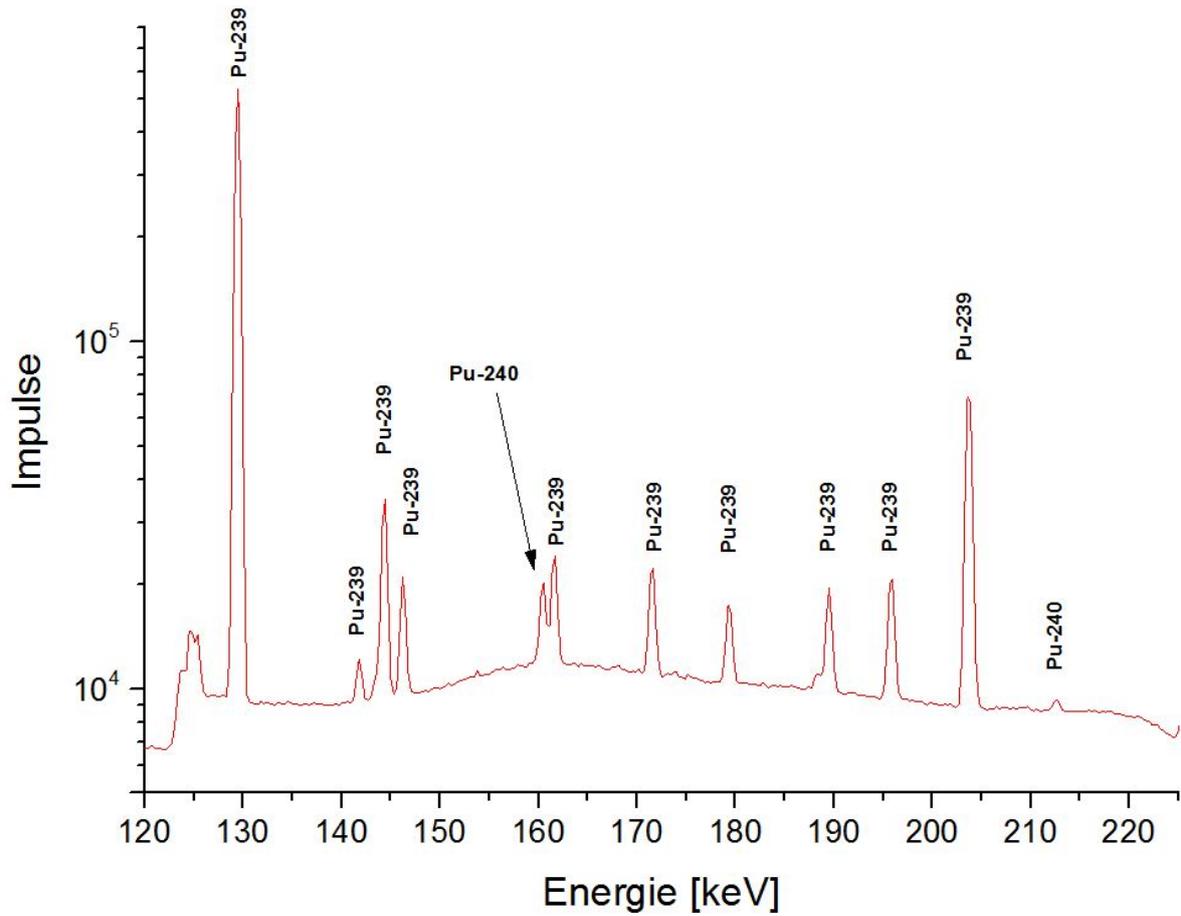


Abb. 5.3.: Gammaspektrum von waffenfähigem Plutonium im Energiebereich von 123 keV bis 255 keV.

E_{mess} [keV]	E_{lit} [keV]	$P_{abs,lit}$ [%]	P_{MCNP}	Identifikation
129,4	129,3	$6,31(4) \times 10^{-3}$	$1,38 \times 10^5$	Pu-239
141,8	141,66	$3,20(7) \times 10^{-5}$	$6,98 \times 10^2$	Pu-239
144,3	144,2	$2,83(6) \times 10^{-4}$	$6,17 \times 10^3$	Pu-239
146,2	146,09	$1,19(3) \times 10^{-4}$	$2,59 \times 10^3$	Pu-239
160,5	160,31	$4,02(4) \times 10^{-4}$	$1,69 \times 10^3$	Pu-240
161,6	161,45	$1,23(2) \times 10^{-4}$	$2,68 \times 10^3$	Pu-239
171,5	171,39	$1,10(2) \times 10^{-4}$	$2,4 \times 10^3$	Pu-239
179,4	179,22	$6,6(1) \times 10^{-5}$	$1,44 \times 10^3$	Pu-239
189,5	188,23	$1,1(1) \times 10^{-5}$	$2,38 \times 10^2$	Pu-239
189,5	189,36	$8,3(1) \times 10^{-5}$	$1,81 \times 10^3$	Pu-239
195,8	195,68	$1,07(1) \times 10^{-4}$	$2,33 \times 10^3$	Pu-239
203,7	203,55	$5,69(3) \times 10^{-4}$	$1,24 \times 10^4$	Pu-239
212,6	212,46	$2,9(1) \times 10^{-6}$	$1,22 \times 10^2$	Pu-240

Tab. 5.1.: Gammalinien des Spektrums von waffenfähigem Plutonium im Energiebereich von 123 keV bis 225 keV mit dazugehörigen P_{MCNP} und Literaturwerten aus [MC11].

Ab 225 keV fällt der Untergrund kontinuierlich. Hierdurch sinkt die Schwelle für die Mindestemissionsstärke:

$$\begin{aligned}
 P_{MCNP} &\geq 40 && \text{im Bereich II (225 keV bis 290 keV),} \\
 P_{MCNP} &\geq 15,8 && \text{im Bereich III (290 keV bis 400 keV) und} \\
 P_{MCNP} &\geq 5,5 && \text{im Bereich IV (400 keV bis 575 keV).}
 \end{aligned}$$

Sämtliche erkennbaren Linien sind dem ^{239}Pu -Zerfall zuzuordnen. Eine vollständige Auflistung der über 40 Linien kann dem Anhang entnommen werden. Exemplarisch sind für jeden Bereich jeweils die stärkste Linie, die gerade noch identifizierbare Linie und eine weitere Linie in Abbildung 5.4 markiert und in Tabelle 5.2 aufgeführt.

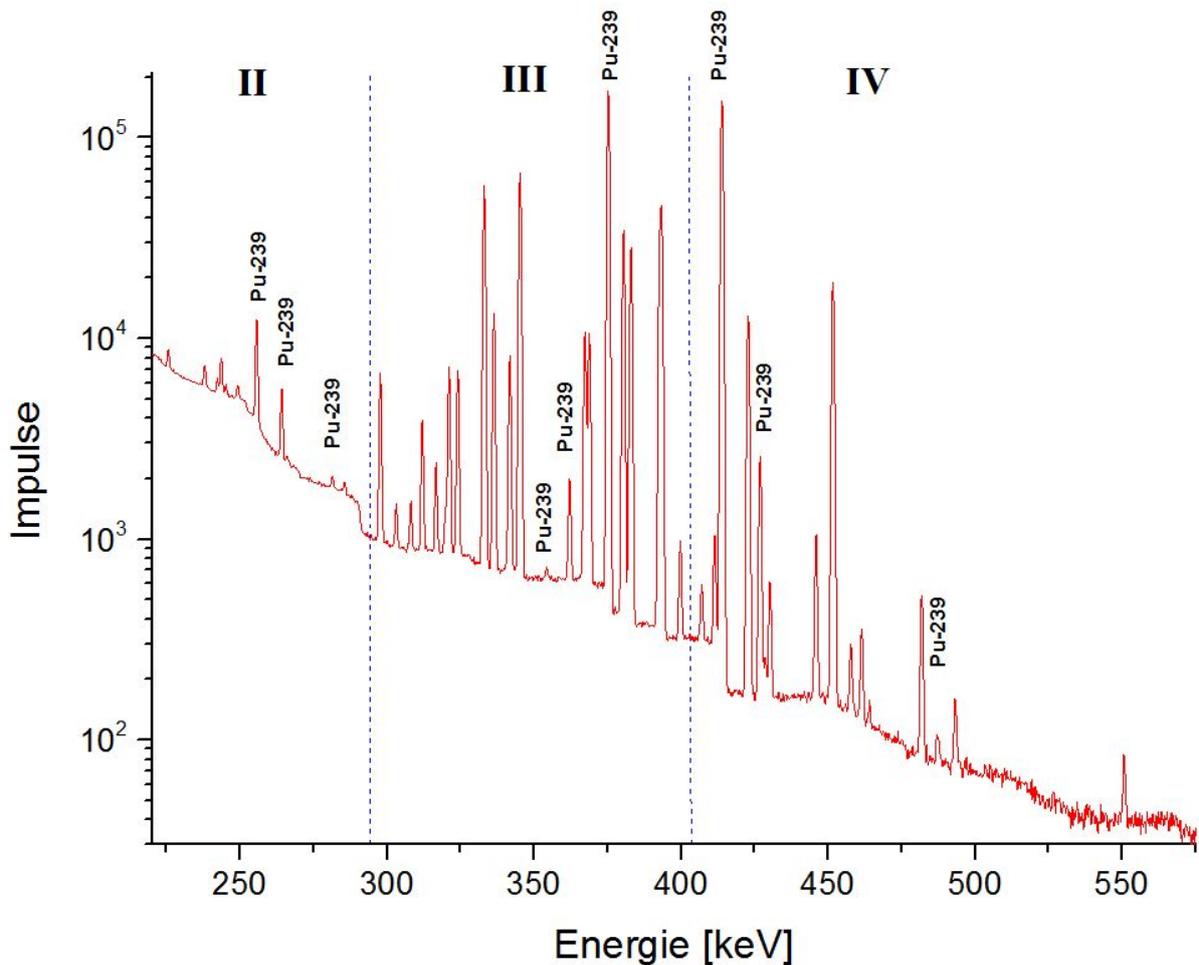


Abb. 5.4.: Spektrum von waffenfähigen Plutonium im Energiebereich von 225 keV bis 575 keV.

	E_{mess} [keV]	E_{lit} [keV]	$P_{abs,lit}$ [%]	P_{MCNP}	Identifikation
Bereich II	255,5	255,38	$8,0(1) \times 10^{-5}$	$1,74 \times 10^3$	Pu-239
	264,1	263,95	$2,65(1) \times 10^{-5}$	$5,78 \times 10^2$	Pu-239
	281,3	281,2	$2,1(3) \times 10^{-6}$	$4,58 \times 10$	Pu-239
Bereich III	354,2	354	$7,3(30) \times 10^{-7}$	$1,59 \times 10$	Pu-239
	362	361,89	$1,22(6) \times 10^{-5}$	$2,66 \times 10^2$	Pu-239
	375,2	375,05	$1,554(9) \times 10^{-3}$	$3,39 \times 10^4$	Pu-239
Bereich IV	413,9	413,71	$1,466(11) \times 10^{-3}$	$3,2 \times 10^4$	Pu-239
	426,8	426,68	$2,33(6) \times 10^{-5}$	$5,08 \times 10^2$	Pu-239
	487,1	487,06	$2,65(21) \times 10^{-7}$	5,78	Pu-239

Tab. 5.2.: Exemplarische Gammalinien des Spektrums von waffenfähigem Plutonium im Energiebereich von 225 keV bis 575 keV.

Der **Abschnitt V** (575 keV bis 900 keV) ist trotz der verlängerten Simulationszeit nicht vollständig analysierbar, da ab 710 keV die Anzahl der Ereignisse teilweise zu gering ist. Abbildung 5.5 zeigt den Energiebereich von 575 keV bis 750 keV. Es sind Beiträge zweier Linien von ^{240}Pu und von 28 Linien des ^{239}Pu -Zerfalls bestimmt worden. In Tabelle 5.3 sind die Energien und Emissionsstärken der Linien zusammengefasst. Von 640 keV bis 660 keV sind die Linien so dicht beieinander, dass die Linien sich teilweise überlagern. Den Untergrund hier korrekt zu bestimmen ist schwierig. Einige Linien überlagern sich, so dass sie im Spektrum nicht getrennt dargestellt werden, wie bei 599 keV und 618 keV.

Dieser Energiebereich ist für die Isotopenidentifikation der geeignetste.

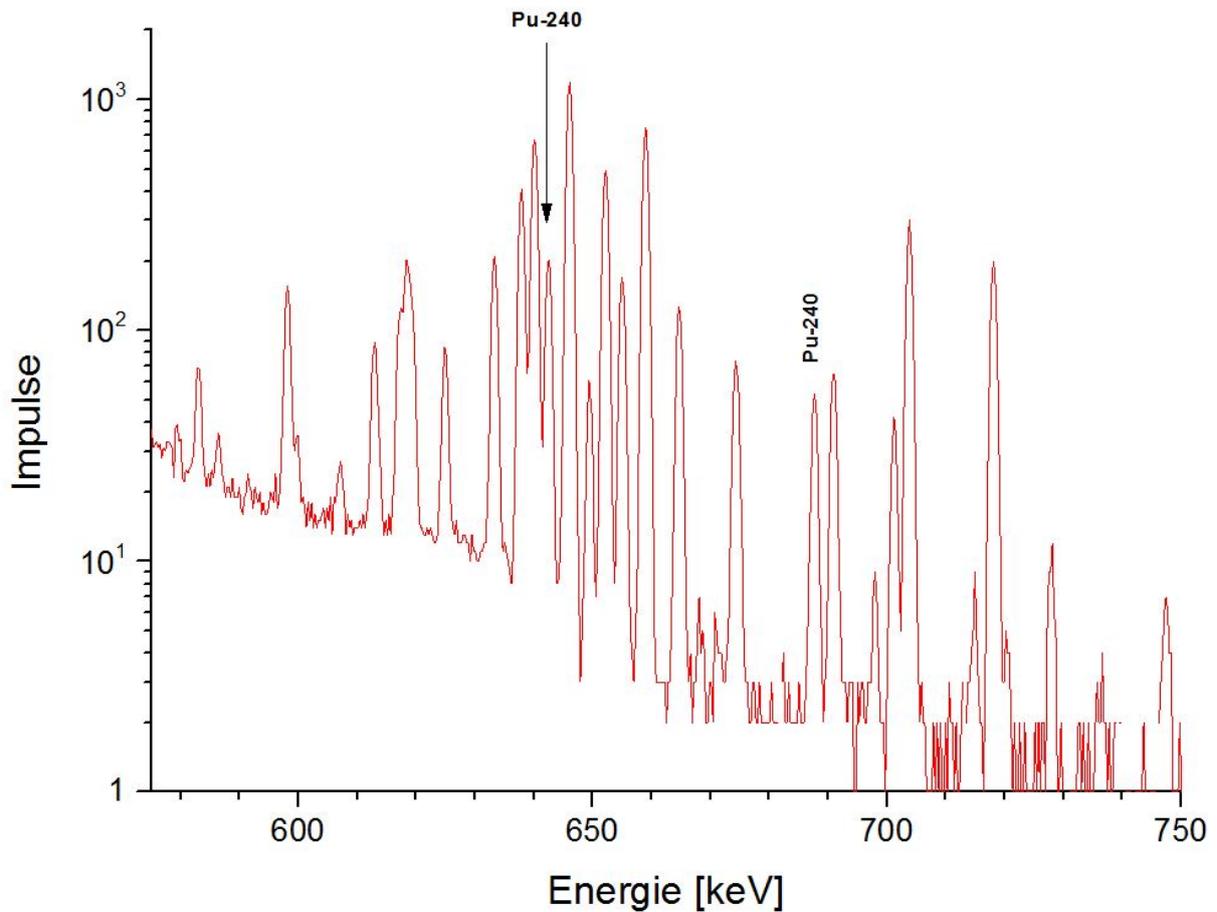


Abb. 5.5.: Spektrum von waffenfähigem Plutonium im Energiebereich von 575 keV bis 750 keV. Nicht beschriftete Linien stammen vom ^{239}Pu -Zerfall.

E_{mess} [keV]	E_{lit} [keV]	$P_{abs,lit}$ [%]	P_{MCNP}	Identifikation
583	582,89	$6,15(18) \times 10^{-7}$	$1,34 \times 10$	Pu-239
586,4	586,3	$1,53(15) \times 10^{-7}$	3,34	Pu-239
598,1	597,99	$1,67(5) \times 10^{-6}$	$3,64 \times 10$	Pu-239
599,7	599,6	$2,0(2) \times 10^{-7}$	4,36	Pu-239
607,1	606,9	$1,2(12) \times 10^{-7}$	2,62	Pu-239
613	612,83	$9,5(5) \times 10^{-7}$	$2,07 \times 10$	Pu-239
	617,1	$1,34(7) \times 10^{-6}$	$2,92 \times 10$	Pu-239
618,4	618,28	$2,04(6) \times 10^{-6}$	$4,45 \times 10$	Pu-239
	619,21	$1,21(8) \times 10^{-6}$	$2,64 \times 10$	Pu-239
624,9	624,78	$8,74(28) \times 10^{-7}$	$1,91 \times 10$	Pu-239
633,3	633,15	$2,53(3) \times 10^{-6}$	$5,52 \times 10$	Pu-239
	637,7	$2,56(3) \times 10^{-6}$	$5,58 \times 10$	Pu-239
637,9	637,8	$2,56(3) \times 10^{-6}$	$5,58 \times 10$	Pu-239
640,1	639,99	$8,7(2) \times 10^{-6}$	$1,9 \times 10^2$	Pu-239
642,5	642,35	$1,39(2) \times 10^{-5}$	$5,46 \times 10$	Pu-240
646,1	645,94	$1,52(3) \times 10^{-5}$	$3,31 \times 10^2$	Pu-239
649,5	649,32	$7,1(5) \times 10^{-7}$	$1,55 \times 10$	Pu-239
652,2	652,05	$6,6(2) \times 10^{-6}$	$1,44 \times 10^2$	Pu-239
655	654,88	$2,25(3) \times 10^{-6}$	$4,9 \times 10$	Pu-239
659	658,86	$9,7(2) \times 10^{-6}$	$2,11 \times 10^2$	Pu-239
644,7	664,58	$1,66(3) \times 10^{-6}$	$3,62 \times 10$	Pu-239
	674,05	$5,15(16) \times 10^{-7}$	$1,12 \times 10$	Pu-239
674,4	674,4	$5,15(16) \times 10^{-7}$	$1,12 \times 10$	Pu-239
687,7	687,57	$3,7(1) \times 10^{-6}$	$1,47 \times 10$	Pu-240
691	690,81	$9,0(25) \times 10^{-7}$	$1,96 \times 10$	Pu-239
698	697,8	$7,4(15) \times 10^{-8}$	1,61	Pu-239
701,24	701,1	$5,12(16) \times 10^{-7}$	$1,12 \times 10$	Pu-239
703,8	703,68	$3,95(2) \times 10^{-6}$	$8,61 \times 10$	Pu-239

Tab. 5.3.: Identifizierte Linien des Spektrums von waffenfähigem Plutonium im Energiebereich von 575 keV bis 750 keV.

5.1.2. Plutonium aus kommerziellen Leistungsreaktoren

Die Isotopenzusammensetzung von Plutonium aus möglichem Reaktormüll ist grundverschieden zu der von waffenfähigem Plutonium. Die Isotope ^{238}Pu , ^{241}Pu und ^{242}Pu bilden einen relevanten Anteil der Proben und der Anteil von ^{240}Pu steigt über zwanzig Prozent. Der ^{239}Pu -Anteil sinkt unter sechzig Prozent (vergl. Tab 4.1 auf Seite 20). Wegen der von ^{238}Pu emittierten Photonen wird mehr Gammastrahlung mit Energien über 800 keV detektiert und der Gesamtverlauf des Spektrums ist unterscheidbar. Dies ist deutlich in Abbildung 5.6 zu erkennen, in der sowohl das Simulationsergebnis von Plutonium aus einem Leichtwasserreaktor (LWR), als auch von waffenfähigem Plutonium dargestellt ist.

Die simulierten Gammaspektren der in Abschnitt 4.1.1 vorgestellten Plutoniumproben aus abgebrannten Brennstäben sind alle vergleichbar gut zur Isotopenidentifikation geeignet. Deswegen wird in diesem Abschnitt nicht jedes der untersuchten Spektren in voller Ausführlichkeit vorgestellt. Die Unterschiede der Spektren von Plutonium aus kommerziellen Leistungsreaktoren werden bei der *Bestimmung des Isotopenvektors* ausführlich diskutiert, siehe Abschnitt 5.2.

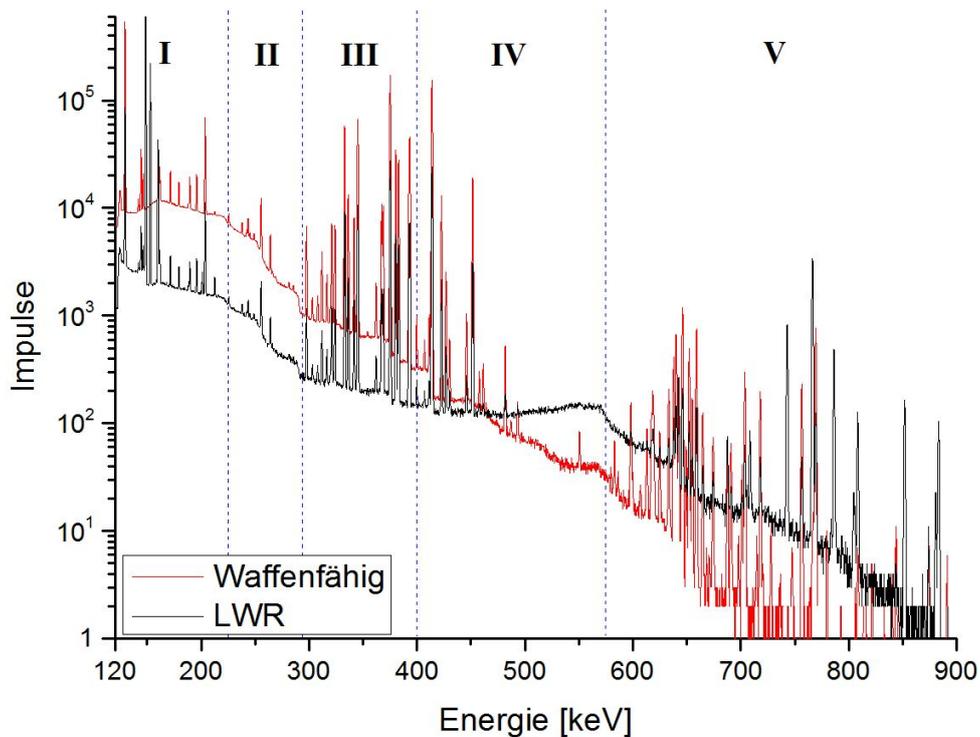


Abb. 5.6.: Vergleich der Spektren von waffenfähigem Plutonium und Plutonium aus einem Leichtwasserreaktor (LWR); Energiebereich von 123 keV bis 900 keV , wie Abb. 5.2.

Im **Energiebereich I** (123 keV bis 225 keV) sind die Linien mit den meisten Impulsen zu finden. Nur Linien mit einer Emissionsstärke von $P_{MCNP} \geq 140$ sind erkennbar. Abbildung 5.7 zeigt den Ausschnitt des Spektrums für Plutonium aus einem mit UO_2 und für Plutonium aus einem mit MOX-Brennstoff betriebenen Druckwasserreaktor. Es können Beiträge aller Plutoniumisotope außer ^{242}Pu identifiziert werden. Die Linie bei 160 keV ist eine Überlagerung von ^{240}Pu und ^{241}Pu . Die Auflösung des Spektrums reicht nicht aus, um den Beitrag der benachbarten ^{239}Pu -Linie ($161,6\text{ keV}$) zu quantifizieren. Die identifizierten Übergänge für das LWR-Plutonium sind in Tabelle 5.4 aufgelistet.

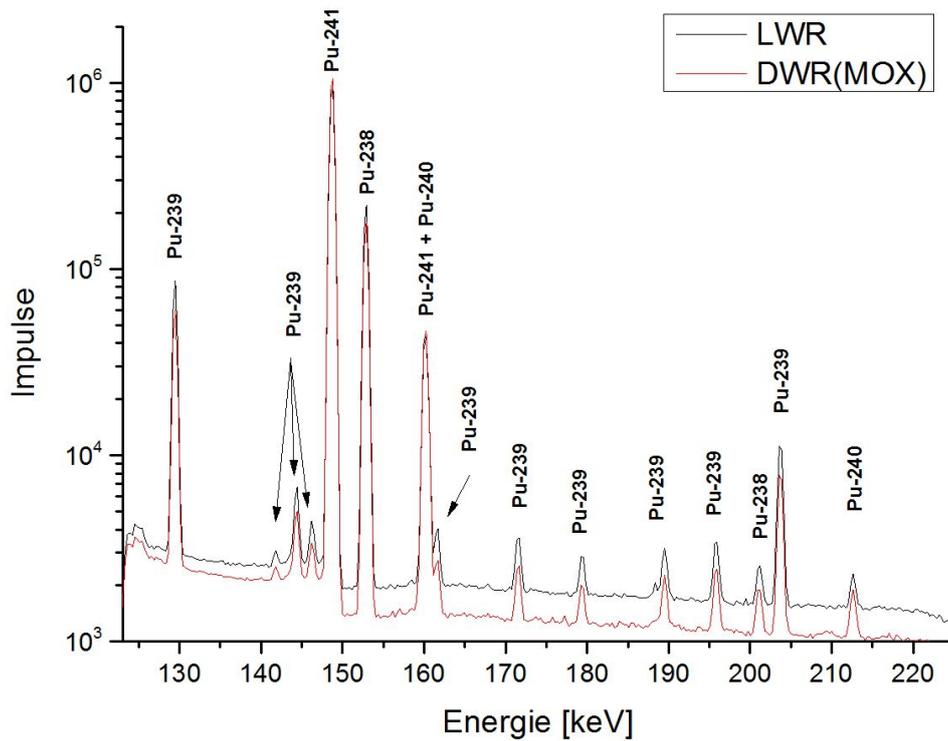


Abb. 5.7.: Spektrum von Plutonium aus einem Leichtwasserreaktor und von Plutonium aus einem mit MOX-Brennstoff betriebenen Druckwasserreaktor; Energiebereich 123 keV bis 225 keV.

E_{mess} [keV]	E_{lit} [keV]	$P_{abs,lit}$ [%]	P_{MCNP}	Identifikation
129,4	129,3	$6,31(4) \times 10^{-3}$	$8,09 \times 10^4$	Pu-239
141,8	141,66	$3,20(7) \times 10^{-5}$	$4,1 \times 10^2$	Pu-239
144,4	144,2	$2,83(6) \times 10^{-4}$	$3,63 \times 10^3$	Pu-239
146,2	146,09	$1,19(3) \times 10^{-4}$	$1,53 \times 10^3$	Pu-239
148,7	148,57	$1,86(1) \times 10^{-4}$	$8,4 \times 10^5$	Pu-241
152,9	152,72	$9,29(7) \times 10^{-4}$	$1,77 \times 10^5$	Pu-238
160,2	159,96	$6,54(8) \times 10^{-6}$	$2,96 \times 10^4$	Pu-241
	160,31	$4,02(4) \times 10^{-4}$	$7,63 \times 10^3$	Pu-240
161,6	161,45	$1,23(2) \times 10^{-4}$	$1,58 \times 10^3$	Pu-239
171,5	171,39	$1,10(2) \times 10^{-4}$	$1,41 \times 10^3$	Pu-239
179,4	179,22	$6,6(1) \times 10^{-5}$	$8,47 \times 10^2$	Pu-239
189,5	188,23	$1,1(1) \times 10^{-5}$	$1,4 \times 10^2$	Pu-239
189,5	189,36	$8,3(1) \times 10^{-5}$	$1,06 \times 10^3$	Pu-239
195,8	195,68	$1,07(1) \times 10^{-4}$	$1,37 \times 10^3$	Pu-239
201,1	200,97	$3,6(2) \times 10^{-6}$	$7,41 \times 10^2$	Pu-238
203,7	203,55	$5,69(3) \times 10^{-4}$	$7,3 \times 10^3$	Pu-239
212,6	212,46	$2,9(1) \times 10^{-6}$	$5,5 \times 10^2$	Pu-240

Tab. 5.4.: Gammalinien des Spektrums von LWR-Plutonium im Energiebereich von 123 keV bis 170 keV.

In den **Bereichen II bis IV** verläuft das Spektrum ähnlich wie beim waffenfähigem Plutonium. Da der Untergrund jedoch stärker ist, sind weniger Linien identifizierbar. Zur Veranschaulichung ist in Abbildung 5.8 sowohl das Spektrum für Plutonium aus einem Leichtwasserreaktor als auch für waffenfähiges Plutonium im entsprechenden Energiebereich dargestellt. Sämtliche erkennbaren Linien stammen von ^{239}Pu . Die tabellarische Zusammenfassung der Linien ist im Anhang zu finden.

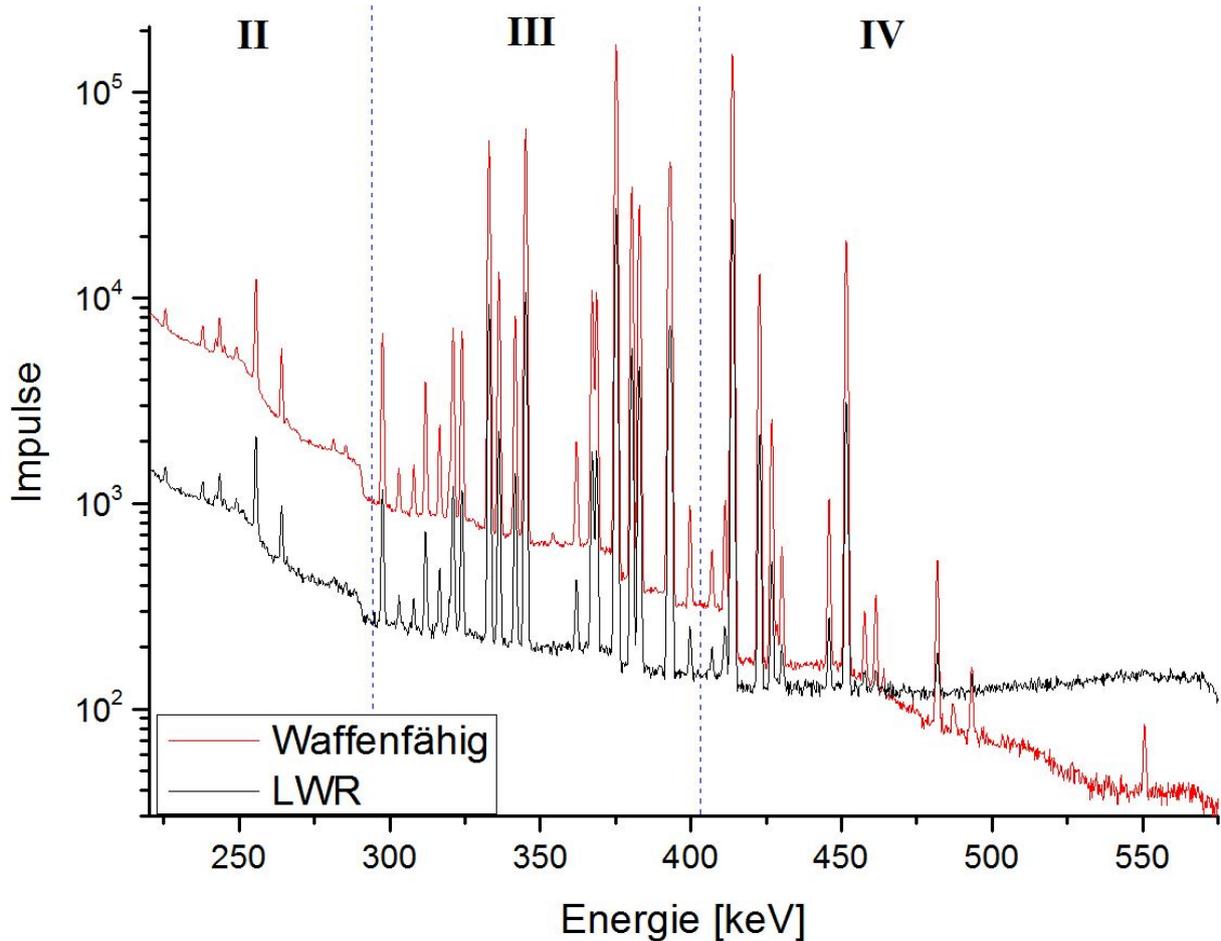


Abb. 5.8.: Vergleich der Spektren von waffenfähigem Plutonium und Plutonium aus einem Leichtwasserreaktor (LWR); Energiebereich von 225 keV bis 575 keV .

Der **Abschnitt V** (575 keV bis 900 keV) des Spektrums von LWR-Plutonium zeigt deutliche Unterschiede zum Spektrum des waffenfähigen Plutoniums. Das Spektrum ist bis 850 keV lückenlos. Die beiden ^{240}Pu -Linien bei den Energien 642,5 keV und 687,7 keV sind stärker und daher einfacher zu identifizieren. Eine weitere ^{240}Pu -Linie ist bei 874 keV erkennbar. Zehn der sichtbaren Linien sind dem ^{238}Pu -Zerfall zuzuordnen. In Abbildung 5.9 ist das Spektrum von 575 keV bis 900 keV dargestellt. Alle Linien, die nicht ^{239}Pu zugeordnet wurden, sind beschriftet. Tabelle 5.5 listet alle identifizierten Linien auf. Eine genauere Betrachtung des Spektrums erfolgt in Abschnitt 5.2, weil dieser Abschnitt geeignet ist, das Isotopenverhältnis von ^{238}Pu zu ^{239}Pu und ^{240}Pu zu bestimmen.

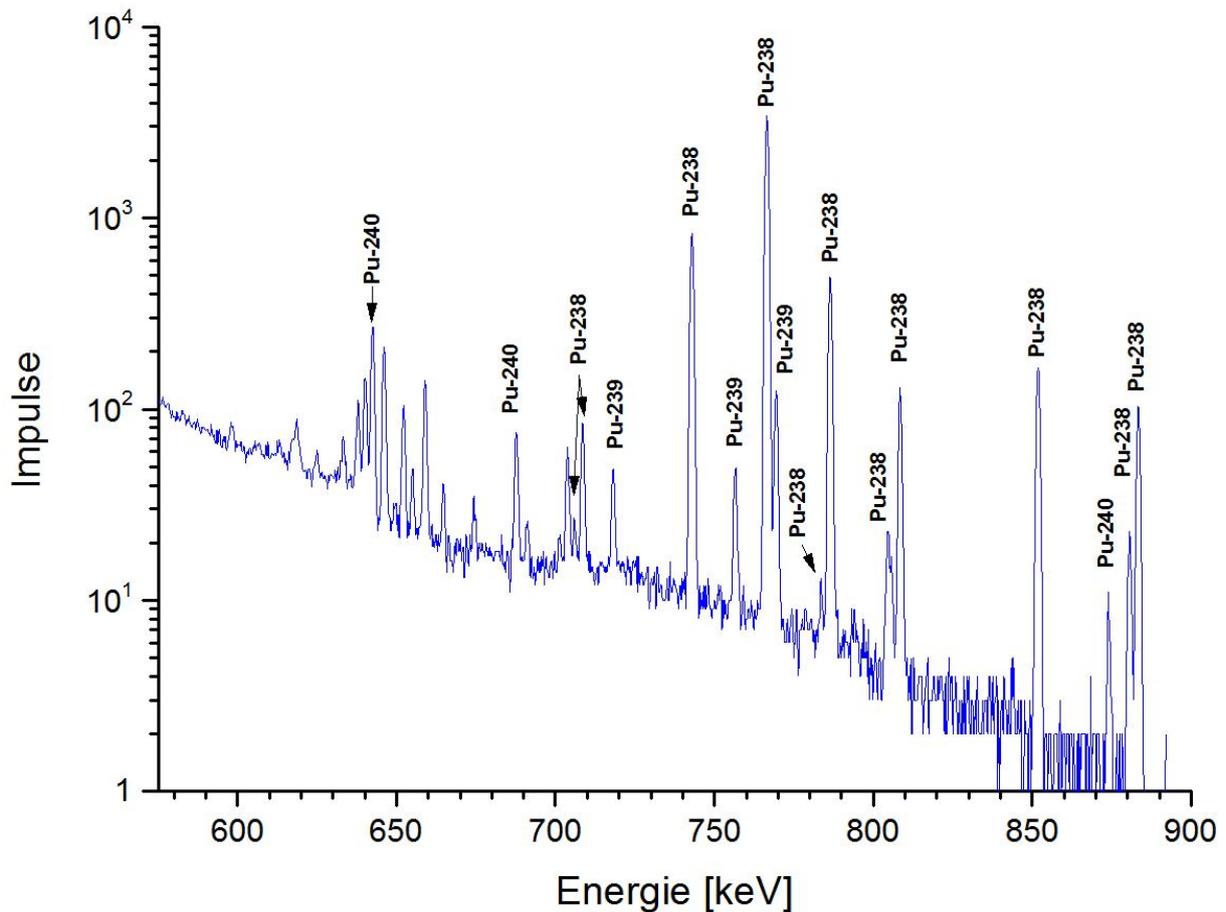


Abb. 5.9.: Gammaspektrum von Plutonium aus einem Leichtwasserreaktor im Energiebereich von 575 keV bis 900 keV . Die nicht beschrifteten Linien unterhalb von 750 keV entstehen durch ^{239}Pu -Zerfall.

5.1.3. Zusammenfassung

Im Spektrum von waffenfähigem Plutonium können beide vorhandenen Isotope identifiziert werden. Im Spektrum von Plutonium aus kommerziellen Leistungsreaktoren kommt es bei 160 keV zu einer Überlagerung einer ^{240}Pu und einer ^{241}Pu Linie. Im Spektrum ist aber von beiden Linien mindestens eine weitere gut sichtbare Linie vorhanden, so dass beide Isotope zweifelsfrei identifiziert werden können.

Die meisten Gammalinien von ^{238}Pu liegen im Energiebereich oberhalb von 700 keV . Eine weitere gut erkennbare Linie liegt bei $152,7\text{ keV}$. Durch die hohe Emissionsrate werden verhältnismäßig viele Photonen dieses Isotops gemessen. Dadurch ist ^{238}Pu gut identifizierbar.

Auch die Identifizierung von ^{239}Pu gelingt sehr gut. In jedem betrachteten Energieabschnitt gibt es eine Vielzahl von Linien, die sich nicht mit anderen überlagern und daher für die Identifizierung gut geeignet sind. Besonders im Energiebereich von 350 keV bis 455 keV sind viele starke Linien vertreten.

^{242}Pu kann in keinem untersuchten Gammaspektrum identifiziert werden. Es gibt zwar einen Gammaübergang mit einer Energie von $158,8\text{ keV}$, aber die Emissionswahrscheinlichkeit ist so gering, dass diese im Untergrund verschwindet.

Eine Zuordnung, ob das untersuchte Plutonium aus abgebrannten Brennelementen separiert wurde, ist durch die Identifizierung der Isotope möglich.

E_{mess} [keV]	E_{lit} [keV]	$P_{abs,lit}$ [%]	P_{MCNP}	Identifikation
598,1	597,99	$1,67(5) \times 10^{-6}$	21,4	Pu-239
	617,1	$1,34(7) \times 10^{-6}$	17,2	Pu-239
618,4	618,28	$2,04(6) \times 10^{-6}$	26,2	Pu-239
	619,21	$1,21(8) \times 10^{-6}$	15,5	Pu-239
624,9	624,78	$8,74(28) \times 10^{-7}$	11,2	Pu-239
633,3	633,15	$2,53(3) \times 10^{-6}$	32,5	Pu-239
	637,7	$2,56(3) \times 10^{-6}$	32,8	Pu-239
637,9	637,8	$2,56(3) \times 10^{-6}$	32,8	Pu-239
640,1	639,99	$8,7(2) \times 10^{-6}$	111,6	Pu-239
642,5	642,35	$1,39(2) \times 10^{-5}$	246,7	Pu-240
646,1	645,94	$1,52(3) \times 10^{-5}$	195	Pu-239
652,2	652,05	$6,6(2) \times 10^{-6}$	84,7	Pu-239
655	654,88	$2,25(3) \times 10^{-6}$	28,9	Pu-239
659	658,86	$9,7(2) \times 10^{-6}$	124,4	Pu-239
664,7	664,58	$1,66(3) \times 10^{-6}$	21,3	Pu-239
	674,05	$5,15(16) \times 10^{-7}$	6,6	Pu-239
674,4	674,4	$5,15(16) \times 10^{-7}$	6,6	Pu-239
687,7	687,57	$3,7(1) \times 10^{-6}$	66,4	Pu-240
691	690,81	$9,0(25) \times 10^{-7}$	1,5	Pu-239
701,24	701,1	$5,12(16) \times 10^{-7}$	6,6	Pu-239
703,8	703,68	$3,95(2) \times 10^{-6}$	50,7	Pu-239
706	705,9	$5,3(20) \times 10^{-8}$	10,1	Pu-238
708,6	708,42	$4,1(7) \times 10^{-7}$	77,9	Pu-238
718,1	718	$2,8(2) \times 10^{-6}$	35,9	Pu-239
742,9	742,81	$5,2(2) \times 10^{-6}$	988,4	Pu-238
756,6	756,4	$3,47(54) \times 10^{-6}$	44,5	Pu-239
766,5	766,39	$2,2(2) \times 10^{-5}$	4181,8	Pu-238
769,4	769,15	$5,1(1) \times 10^{-6}$	65,4	Pu-239
783,6	783,4	$2,4(4) \times 10^{-8}$	4,6	Pu-238
786,4	786,3	$3,22(25) \times 10^{-6}$	612,1	Pu-238
804,9	804,4	$1,2(5) \times 10^{-7}$	22,8	Pu-238
808,4	808,25	$7,9(2) \times 10^{-7}$	150,2	Pu-238
851,8	851,7	$1,24(15) \times 10^{-6}$	235,7	Pu-238
874	873,92	$5,8(6) \times 10^{-7}$	11	Pu-240
880,6	880,5	$1,6(4) \times 10^{-7}$	30,4	Pu-238
883,4	883,23	$7,6(6) \times 10^{-7}$	144,5	Pu-238

Tab. 5.5.: Gammalinien des Spektrums von LWR-Plutonium im Energiebereich von 575 keV bis 900 keV.

5.2. Bestimmung des Isotopenvektors

Um zu bestimmen, für welchen Zweck Plutonium verwendet wurde oder verwendbar ist, muss die möglichst genaue Isotopenzusammensetzung bekannt sein. Wie viel Masse eines Isotops vorhanden ist, kann mit Gammaskopimetrie nur berechnet werden, wenn sämtliche Informationen - die man zum Teil mit einer Messung bestimmen will - über Probenbeschaffenheit, Messaufbau, Abschirmungen etc. bekannt sind und damit das Spektrometer kalibriert werden kann.

Allerdings kann aus einem Gammaskoptrum die Information über die Masse eines Isotops relativ zur Masse eines anderen Isotops gewonnen werden. Das Prinzip wird in Abbildung 5.10 deutlich. Das Spektrum von waffenfähigem Plutonium (Abb. 5.10a) unterscheidet sich von den Spektren von Plutonium aus kommerziellen Reaktoren in die Anzahl der erkennbaren Linien und der Sichtbarkeit der 212 keV Linie. Bei waffenfähigem Plutonium ist der Anteil von ^{240}Pu so gering, dass bei 212 keV nur eine leichte Erhöhung im Spektrum erkennbar ist. In den Spektren der anderen Plutoniumproben (Abb. 5.10b-d) ist der Beitrag dieser Linie viel deutlicher. Es werden verhältnismäßig mehr Photonen dieser Energie detektiert, weil das entsprechende Isotop ein größeren Anteil der Probe ausmacht.

Um den Isotopenvektor, also die prozentualen Beiträge der Isotope zur Probe, zu berechnen, müssen die *Nettopeakflächen* bestimmt werden. Dafür wird bestimmt welche Kanaleinträge zu der Linie gehören. Dann wird der Untergrund subtrahiert. Die Summe der übrigen Impulse ($N_{\gamma,Peak}$) ist proportional zur Anzahl der emittierten Photonen dieser Energie ($N_{\gamma,em}$):

$$N_{\gamma,Peak} = N_{\gamma,em} \cdot P_{det} \quad (5.1)$$

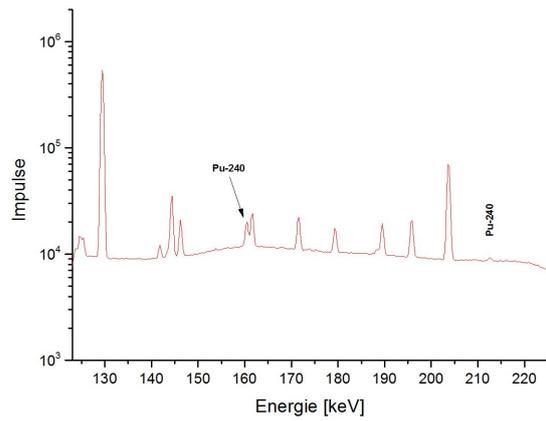
Der Proportionalitätsfaktor P_{det} entspricht der Wahrscheinlichkeit, dass ein emittiertes Teilchen im Detektor korrekt gemessen wird. Dies berücksichtigt sämtliche Effekte, welche die Richtung oder Energie eines Gammaquants beeinflussen (inklusive Selbstabschirmung), ebenso wie die Wahrscheinlichkeit, dass die gesamte Photonenenergie im Detektor deponiert wird. Wie in Kapitel 2 dargelegt, sind diese Wechselwirkungen nicht nur vom Messaufbau und den vorhandenen Materialien abhängig, sondern auch von der Energie der Photonen (E_i). Damit gilt für die Linien mit fast gleicher Energie:

$$\frac{N_{\gamma,Peak}(E_1)}{N_{\gamma,Peak}(E_2)} \approx \frac{N_{\gamma,em}(E_1)}{N_{\gamma,em}(E_2)}, \text{ wenn } E_1 \approx E_2 \quad (5.2)$$

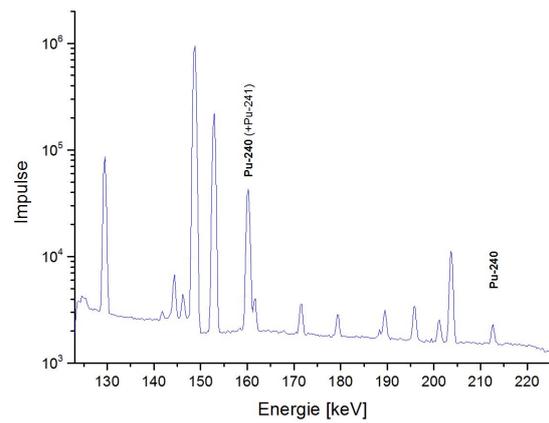
Mit dieser Erkenntnis und der Formel 4.2 lässt sich das Massenverhältnis von zwei Isotopen bestimmen, deren Linienenergie nahe beieinander sind:

$$\begin{aligned} \xrightarrow{4.2} \frac{N_{\gamma,Peak}(E_1)}{N_{\gamma,Peak}(E_2)} &\approx \frac{M \cdot M_{iso,1} \cdot A_{iso,1} \cdot P_{abs}(\gamma_1)}{M \cdot M_{iso,2} \cdot A_{iso,2} \cdot P_{abs}(\gamma_2)} \\ \iff \frac{M_{iso,1}}{M_{iso,2}} &\approx \frac{N_{\gamma,Peak}(E_1) \cdot A_{iso,2} \cdot P_{abs}(\gamma_2)}{N_{\gamma,Peak}(E_2) \cdot A_{iso,1} \cdot P_{abs}(\gamma_1)} \end{aligned} \quad (5.3)$$

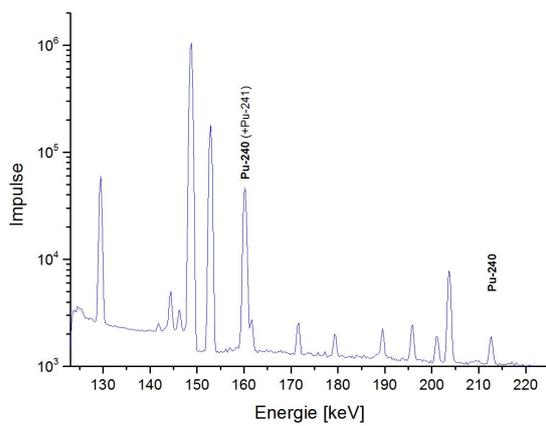
Mit den spezifischen Aktivitäten A_{iso} der Isotope, den absoluten Emissionswahrscheinlichkeiten P_{abs} der jeweiligen Gammalinie und der Flächeninhalte $N_{\gamma,Peak}$. Die Spezifischen Aktivitäten sind in Tabelle 4.2 auf Seite 22 zusammengefasst. Die notwendigen Daten der in dieser Arbeit verwendeten Linien sind in Tabelle 5.6 zu finden.



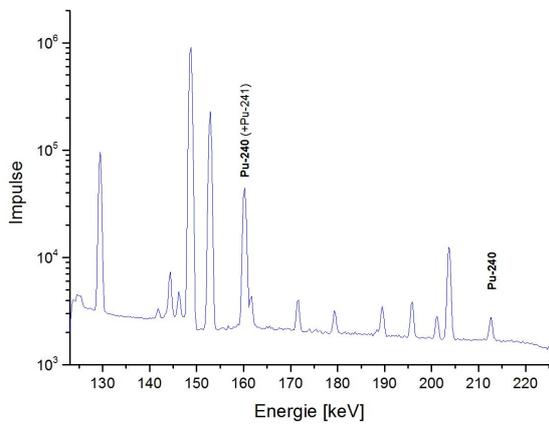
(a) Waffenfähig



(b) LWR



(c) DWR(MOX)



(d) Brüter

Abb. 5.10.: Vergleich der verschiedenen Simulationsergebnisse im Energiebereich von 123 keV bis 225 keV. Markiert sind die Beiträge von ^{240}Pu . Eine vollständige Zuordnung der Linien ist in Abb. 5.7 gegeben.

	Energie[keV]	$P_{abs}[\%]$
^{238}Pu	152,9	$9,29 \times 10^{-4} \pm 7,0 \times 10^{-6}$
	708,4	$4,1 \times 10^{-7} \pm 7,0 \times 10^{-8}$
	742,8	$5,2 \times 10^{-6} \pm 2,0 \times 10^{-7}$
^{239}Pu	129,3	$6,31 \times 10^{-3} \pm 4,0 \times 10^{-5}$
	144,2	$2,83 \times 10^{-4} \pm 6,0 \times 10^{-6}$
	146,9	$1,19 \times 10^{-4} \pm 3,0 \times 10^{-6}$
	640,0	$8,7 \times 10^{-6} \pm 2,0 \times 10^{-7}$
	645,9	$1,52 \times 10^{-5} \pm 3,0 \times 10^{-7}$
	690,8	$9,0 \times 10^{-7} \pm 2,5 \times 10^{-7}$
	718,0	$2,8 \times 10^{-6} \pm 2,0 \times 10^{-7}$
^{240}Pu	642,4	$1,3 \times 10^{-5} \pm 1,0 \times 10^{-6}$
	687,6	$3,5 \times 10^{-6} \pm 2,0 \times 10^{-7}$
^{241}Pu	148,6	$1,86 \times 10^{-4} \pm 1,4 \times 10^{-6}$

Tab. 5.6.: Daten aus [MC11] für Gammalinien, die in dieser Arbeit zur Bestimmung der Isotopenvektoren verwendet wurden.

Berechnung von Nettopeakflächen

Für die Berechnung der Flächeninhalte der Linien ist nicht nur die Energie der Kanäle wichtig, sondern auch die Anzahl der Impulse in jedem betrachteten Kanal. Abbildung 5.11 zeigt einen Ausschnitt des Spektrums von Plutonium aus einem Leichtwasserreaktor, in dem drei *Peaks* erkennbar und markiert sind. Dargestellt sind die Einträge der Kanäle als Balkendiagramm und über die beiden deutlichsten Linien ist jeweils eine Gauß-Kurve gelegt. Die ^{239}Pu -Linie bei 146 keV ist vergleichsweise schlecht ausgeprägt. Die 148,6 keV-Linie von ^{241}Pu und die Linie von ^{238}Pu bei 152,7 keV sind so stark, dass sich die Maxima deutlich vom Untergrund abheben. Als Untergrund wird die durchschnittlich gemessene Anzahl von Impulsen bezeichnet. In kleinen Energieintervallen kann der Verlauf des Untergrunds als linear angesehen werden. In der Abbildung 5.11 ist der Untergrund zwischen 150 keV und 151,5 keV sowie im Bereich oberhalb von 154 keV nahezu konstant.

Beispiel ^{238}Pu : Offensichtlich bilden 7 Kanäle den Beitrag der Linie bei 153 keV. Mit OriginPro wurde eine Gauß-Kurve für das Maximum angepasst. Der Erwartungswert des Maximums beträgt 152,9 keV.

Um den Untergrund zu bestimmen, wird der Mittelwert der fünf Kanäle vor dem Maximum (150,5 keV bis ca. 151,9 keV) und der Mittelwert der fünf Kanäle nach dem Maximum (154 keV bis ca. 155,3 keV) gebildet. Die Gerade, die durch diese beiden Punkte (\bar{E}_1, \bar{N}_1) und (\bar{E}_2, \bar{N}_2) gezogen werden kann, wird mit Formel 5.4 berechnet und sie definiert den energieabhängigen Untergrund in diesem Energieintervall:

$$U(E) = \frac{\bar{N}_2 - \bar{N}_1}{\bar{E}_2 - \bar{E}_1} \cdot (E - \bar{E}_1) + \bar{N}_1 \quad (5.4)$$

Mit dieser Formel kann der Untergrund für jeden Kanal, der zur Linie beiträgt, bestimmt werden. Um die Anzahl der Gesamtpulse dieser Linie zu berechnen, wird die Summe über alle Impulse oberhalb des Untergrunds gebildet:

$$N_{\gamma,Peak} = \sum_{i=1}^k (N_{\gamma,Kanal}(E_i) - U(E_i)) \quad , \quad (5.5)$$

wobei k die Anzahl der Kanäle ist, die zum Maximum beitragen, $N_{\gamma,Kanal}(E_i)$ die Anzahl der Impulse des entsprechenden Kanals und $U(E_i)$ der Untergrund der entsprechenden Kanalenergie.

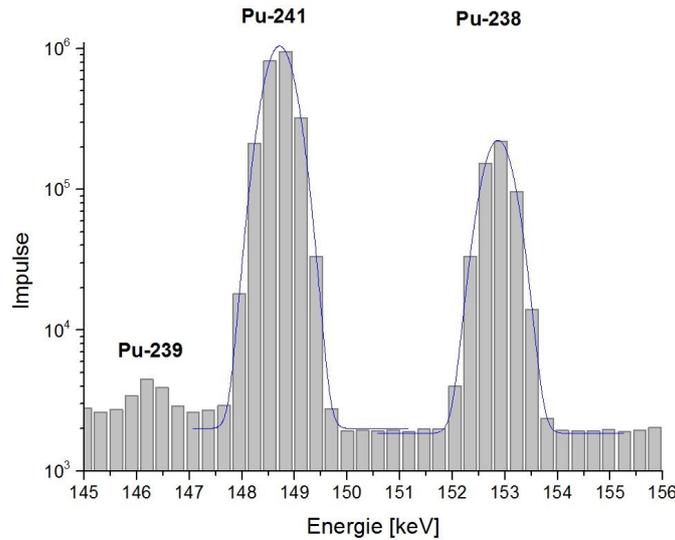


Abb. 5.11.: Energiebereich von 145 keV bis 156 keV als Balkendiagramm, mit jeweils angepasster Gauß-Kurve.

An der Linie von ^{241}Pu wird deutlich, dass nicht immer je 5 Kanäle zur Untergrundbestimmung genutzt werden können. Im Energiebereich vor der Linie (von 146 keV bis 147,5 keV) liegt der Bereich der ^{239}Pu -Linie. Nur die beiden Kanäle bei 147 keV und 147,3 keV können verwendet werden, um den Untergrund zu bestimmen.

5.2.1. Waffenfähiges Plutonium

Wie im Abschnitt 5.1.1 festgestellt, gibt es zwei Energiebereiche, in denen Linien von ^{240}Pu zu finden sind. Ein Vergleich der Abbildungen 5.3 und 5.5 zeigt, dass der Energiebereich von 640 keV bis 695 keV geeigneter ist, das Isotopenverhältnis zu bestimmen, da hier benachbarte Linien von ^{240}Pu und ^{239}Pu besser aufgelöst sind. In Abbildung 5.12 sind die Linien markiert, mit deren Flächeninhalten das Verhältnis der Isotope bestimmt wurde. Die Bestimmung des Untergrunds ist hier erschwert, da sich im Bereich um 642 keV mehrere Linien überlagern und im Bereich um 690 keV so wenig Impulse gemessen wurden, dass der relative statistische Fehler groß ist. Zunächst wurde das beschriebene Verfahren zur Berechnung der Flächeninhalte gewählt. Der Anteil von sich überlagernden Linien wird nicht getrennt, sondern einfach der Flächeninhalt des Maximums bestimmt. Das Ergebnis der Berechnung der Anzahl der Gesamtpulse ist in Tabelle 5.7 zusammengefasst. Die mit Formel 5.3 bestimmten Isotopenverhältnisse sind für beide Linien-Paare in Tabelle 5.8 aufgeführt. Die Isotopenzusammensetzungen werden mit denjenigen verglichen, die in der Eingabedatei für die Simulation festgelegt wurden.

	^{239}Pu		^{240}Pu	
Energie [keV]	645,9	690,8	642,4	687,6
$N_{\gamma,Peak}$	$4639,2 \pm 235,1$	$235,1 \pm 15,3$	$573,8 \pm 24,0$	$199,6 \pm 14,1$

Tab. 5.7.: Aus dem Spektrum von waffenfähigem Plutonium bestimmte Flächeninhalte für je zwei Linien von ^{239}Pu und ^{240}Pu .

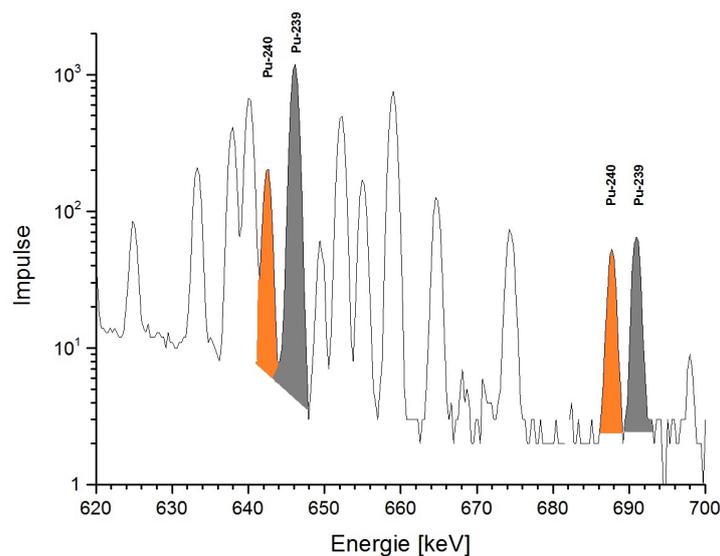


Abb. 5.12.: Gammaskpektrum von waffenfähigem Plutonium. Energiebereich 620 keV bis 700 keV . Die farblichen Markierungen geben einen Eindruck der für die Isotopenzusammensetzung berechneten Flächen.

Es gibt deutliche Abweichungen zwischen dem aus dem Spektrum bestimmtem und dem realen Isotopenvektor. In dem Energieintervall um 690 keV ist auf Grund der geringen Zählrate der relative Fehler so groß, dass der reale Wert innerhalb der Abschätzung liegt. Gleichzeitig ist diese Abschätzung genau genug, dass das Isotopenverhältnis nicht mit von Plutonium aus kommerziellen Reaktoren verwechselt werden kann.

Das beschriebene Verfahren ist fehlerbehaftet bei $642,4\text{ keV}$, da der Anteil der benachbarten ^{239}Pu -Linien nicht vom Flächeninhalt subtrahiert wird. Deswegen wird der Anteil von ^{240}Pu zu stark eingeschätzt. Um die Beiträge der Linien besser zu bestimmen, muss eine *Fit-Funktion* berechnet werden. Hierfür gibt es einige geeignete Computerprogramme, z.B. der *Impuls Analyzer* von *OriginPro*. Dieses Instrument der automatischen Analyse bietet die Möglichkeit, den Untergrund zu subtrahieren und anhand der bestimmten Linien den Verlauf des Spektrums mit überlagerten Gauß-Funktionen anzupassen. Es wird also nicht, wie im oberen Verfahren beschrieben, jede einzelne Linie betrachtet, sondern ein zusammenhängender *Kurvenverlauf* der untersuchten Linien. In Tabelle 5.9 sind die so bestimmten Flächeninhalte aufgeführt. Das hieraus bestimmte Resultat für das Isotopenverhältnis ist deutlich näher am realen Wert, vergl. Tabelle 5.10. Für überlagernde Linien ist die automatisierte Analyse notwendig.

	645,9 keV / 642 keV	690,8 keV / 687,6 keV	real
$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{240}\text{Pu}}$	25,3 ±2,3	16,8 ±5,0	19

Tab. 5.8.: Aus dem Spektrum bestimmter Isotopenvektor für waffenfähiges Plutonium.

	^{239}Pu		^{240}Pu	
Energie [keV]	645,9	690,8	642,4	687,6
$N_{\gamma,Peak}$	1520,3 ± 39	78,4 ± 8,9	250,2 ± 15,8	60,9 ± 7,8

Tab. 5.9.: Die aus dem Spektrum von waffenfähigem Plutonium mit OrigionPro ermittelten Flächeninhalte für je zwei Linien von ^{239}Pu und ^{240}Pu .

	645,9 keV / 642 keV	690,8 keV / 687,6 keV	real
$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{240}\text{Pu}}$	19,0 ±2	18,29 ±6,0	19

Tab. 5.10.: Aus dem mit OrigionPro analysiertem Spektrum bestimmter Isotopenvektor für waffenfähiges Plutonium.

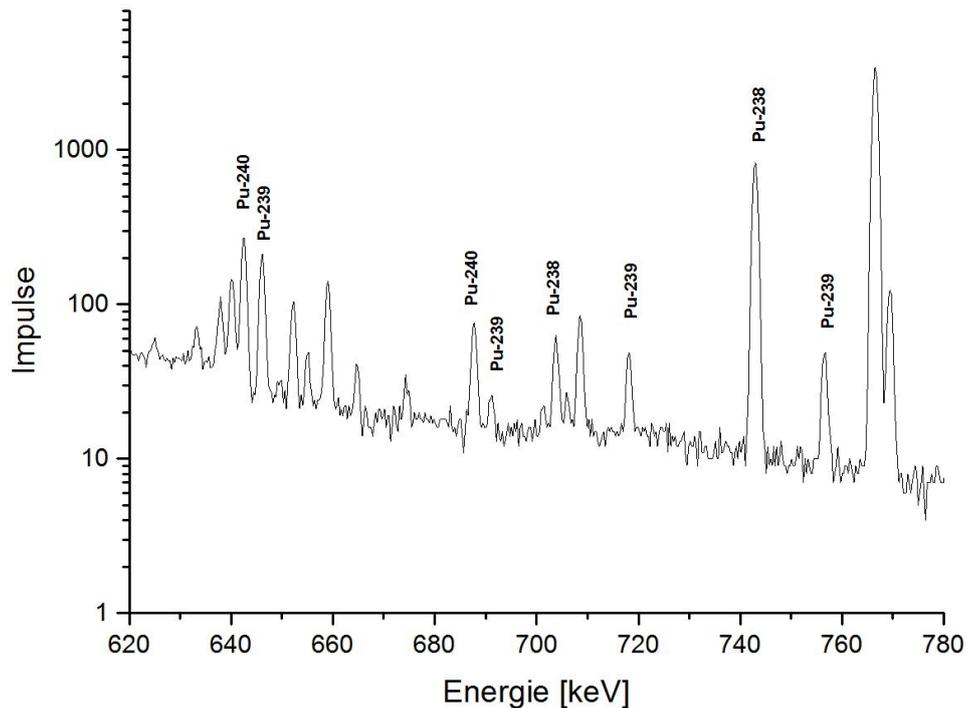


Abb. 5.13.: Ausschnitt des Spektrums von LWR-Plutonium im Energiebereich zwischen 620 keV und 780 keV . Für die Bestimmung des Isotopenvektors verwendete Linien sind beschriftet.

5.2.2. Plutonium aus kommerziellen Leistungsreaktoren

Die Spektren der unterschiedlichen nichtwaffenfähigen Proben weisen dieselben Charakteristika auf. Am Beispiel des Spektrums von Plutonium aus abgebranntem UO_2 Brennstoff wird erläutert, welche Linien für die Berechnung der jeweiligen Isotopenvektoren verwendbar erscheinen. Anschließend werden die Ergebnisse präsentiert. Die wichtigsten Informationen sind am Ende des Kapitels zusammengefasst.

LWR-Plutonium

In den Spektren von Plutonium aus abgebrannten Brennelementen sind zwei Energiebereiche für die Bestimmung der Isotopenverhältnisse geeignet. Zwischen 130 keV und 210 keV können vier Isotope identifiziert werden. In Abbildung 5.7 auf Seite 39 ist erkennbar, dass eine Linie von ^{241}Pu direkt neben einer Linie von ^{238}Pu und neben mehreren ^{239}Pu -Linien ist. Die ^{239}Pu -Linien sind jedoch verhältnismäßig schwach, daher wird die für dieses Isotop am deutlichsten ausgeprägte Linie bei 130 keV auch für eine Abschätzung des ^{239}Pu -Anteils herangezogen.

Wie bei waffenfähigem Plutonium wird der prozentuale Anteil von ^{240}Pu in dem Energieabschnitt ab 640 keV bestimmt. Dieser Energieabschnitt ist in den Simulationsergebnissen von Plutonium aus abgebranntem Kernbrennstoff besser zur Analyse geeignet als beim Spektrum von waffenfähigem Plutonium, da das Spektrum deutlicher herausgebildet ist. Dies ist in Abbildung 5.13 zu sehen, welche das Energieintervall von 640 keV bis 760 keV des Simulationsergebnisses von Plutonium aus einem Leichtwasser-Brennelement zeigt. In dieser Abbildung sind diejenigen Linien beschriftet, welche für die Bestimmung des Isotopenvektors verwendet wurden. Auf der folgenden Seite sind in den Tabellen 5.12 bis 5.14 die Ergebnisse der Analyse zusammengefasst.

	Energie[keV]	$N_{\gamma,Peak}$	
^{238}Pu	152,9	$5,09 \times 10^5$	$\pm 7,1 \times 10^2$
	708,4	$2,52 \times 10^2$	$\pm 1,5 \times 10$
	742,8	$3,43 \times 10^3$	$\pm 5,8 \times 10$
^{239}Pu	129,3	$1,87 \times 10^5$	$\pm 4,3 \times 10^2$
	144,2	$9,41 \times 10^3$	$\pm 9,7 \times 10$
	146,9	$4,0 \times 10^3$	$\pm 6,3 \times 10$
	640,0	$3,36 \times 10^2$	$\pm 1,8 \times 10$
	645,9	$8,43 \times 10^2$	$\pm 2,9 \times 10$
	690,8	$5,02 \times 10$	$\pm 7,1$
	718,0	$1,36 \times 10^2$	$\pm 1,2 \times 10$
	756,4	$1,83 \times 10^2$	$\pm 1,3 \times 10$
^{240}Pu	642,4	$1,24 \times 10^3$	$\pm 3,5 \times 10$
	687,6	$3,14 \times 10^2$	$\pm 1,8 \times 10$
^{241}Pu	148,6	$2,254 \times 10^6$	$\pm 1,5 \times 10^3$

Tab. 5.11.: Aus dem Spektrum berechnete Anzahl der Gesamtimpulse für Gammalinien von Plutonium aus einem Leichtwasserreaktor.

	645,9 keV / 642 keV	690,8 keV / 687,6 keV	real
$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{240}\text{Pu}}$	2,55 $\pm 0,24$	1,86 $\pm 0,63$	2,47

Tab. 5.12.: Isotopenverhältnis ^{239}Pu zu ^{240}Pu für LWR-Plutonium.

	148,6 keV / 152,9 keV	real
$\frac{^{241}\text{Pu}}{^{238}\text{Pu}}$	3,80 $\pm 0,04$	3,93

Tab. 5.13.: Isotopenverhältnis ^{241}Pu zu ^{238}Pu für LWR-Plutonium.

	129,3 keV / Δ	144,2 keV / Δ	146,9 keV / Δ	real
$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{238}\text{Pu}}$	14,96 $\pm 0,16$	16,76 $\pm 0,42$	16,94 $\pm 0,52$	18,63
	718 keV / 708,4 keV	718 keV / 742,8 keV	756,4 keV / 742,8 keV	real
$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{238}\text{Pu}}$	20,13 $\pm 4,33$	18,77 $\pm 2,29$	20,66 $\pm 3,68$	18,63

Tab. 5.14.: Isotopenverhältnis ^{239}Pu zu ^{238}Pu für LWR-Plutonium. Δ steht für die ^{238}Pu -Linie bei 152 keV

Die Abweichung des aus dem Spektrum bestimmten Isotopenverhältnisses von ^{239}Pu zu ^{240}Pu zum realen Isotopenverhältnis liegt innerhalb des berechneten Fehlers (Tab. 5.12). Dieses Isotopenverhältnis ist in diesem Spektrum auch ohne eine Anpassung von Gauß-Funktionen gut abschätzbar, weil der Anteil von ^{240}Pu deutlich höher ist als bei waffenfähigem Plutonium und somit der Anteil von ^{239}Pu am Maximum bei 642 keV geringer ist.

Das Verhältnis der Isotope ^{239}Pu und ^{238}Pu ist mit dem vorgestellten Verfahren am korrektesten zwischen 700 keV und 743 keV bestimmt worden. In diesem Energiebereich sind die berechneten Fehler aufgrund der niedrigen Zählrate sehr hoch. Im Energieintervall 129 keV bis 152 keV sind die Fehlertoleranzen geringer, dafür wird ein zu hoher Anteil von ^{238}Pu berechnet (Tab. 5.14). Dies liegt unter anderem daran, dass die Energiedifferenz der betrachteten Linien verhältnismäßig hoch ist.

Auch die relative Abweichung des ermittelten Wertes zum realen Wert für das Verhältnis von ^{241}Pu zu ^{238}Pu ist mit 3,4% größer als der berechnete Fehler. Die Abweichung kann nicht mit einer starken Überlagerung der Linien erklärt werden. Für diesen Fall müsste die Abweichung deutlich geringer werden, wenn die Flächeninhalte mit dem vorgestellten Hilfsmittel *Impuls Analyser* bestimmt werden. Wie in Tabelle 5.15 dargestellt, ist auch in diesem Fall die Abweichung zum realen Wert größer als die berechnete Fehlergrenze.

	^{241}Pu	^{238}Pu
Energie [keV]	148,6	152,9
$N_{\gamma,Peak}$	$6,905 \times 10^5 \pm 800$	$1,488 \times 10^5 \pm 400$
	148 keV / 152 keV	real
$\frac{^{241}\text{Pu}}{^{238}\text{Pu}}$	$3,84 \pm 0,04$	3,94

Tab. 5.15.: Mit OrigionPro ermittelte Ergebnisse der Flächeninhalte und das hieraus berechnete Isotopenverhältnis von ^{239}Pu zu ^{240}Pu aus dem Spektrum von Plutonium aus abgebranntem UO_2 Brennstoff.

Plutonium aus abgebranntem MOX-Brennelement, DWR(MOX)

Im Simulationsergebnis von Plutonium aus einem abgebrannten MOX-Brennelement, dass in einem Druckwasserreaktor eingesetzt wurde (DWR(MOX)), sind dieselben Linien identifizierbar wie im Spektrum von LWR-Plutonium. Die ermittelten Flächeninhalte stehen in Tabelle 5.16. Wie gut die verschiedenen Isotopenverhältnisse bestimmbar sind, ist den Tabellen 5.17 bis 5.19 zu entnehmen.

- Im Fehlerintervall des aus dem Spektrum bestimmten Isotopenverhältnisses von ^{239}Pu zu ^{240}Pu liegt der reale Wert (Tab. 5.17).
- Die relative Abweichung zwischen dem realen Verhältnis der Isotope ^{241}Pu zu ^{238}Pu und dem aus dem Spektrum bestimmten (Tab. 5.18), ist mit 3,2% fast genauso groß wie im Spektrum des LWR-Plutoniums.
- Der Flächeninhalt der Linie von ^{238}Pu bei 742,8 keV ist am besten geeignet für dieses Verfahren der Bestimmung des Isotopenverhältnisses von ^{239}Pu zu ^{238}Pu .

	Energie[keV]	$N_{\gamma,Peak}$	
^{238}Pu	152,9	$4,132 \times 10^5$	$\pm 6,4 \times 10^2$
	708,4	$2,06 \times 10^2$	$\pm 1,4 \times 10$
	742,8	$2,81 \times 10^3$	$\pm 5,3 \times 10$
^{239}Pu	129,3	$1,29 \times 10^5$	$\pm 3,6 \times 10^2$
	144,2	$6,6 \times 10^3$	$\pm 8,1 \times 10$
	146,9	$2,58 \times 10^3$	$\pm 5,1 \times 10$
	640,0	$3,29 \times 10^2$	$\pm 1,8 \times 10$
	645,9	$7,33 \times 10^2$	$\pm 2,7 \times 10$
	690,8	$3,15 \times 10$	$\pm 5,6$
	718,0	$1,26 \times 10^2$	$\pm 1,1 \times 10$
	756,4	$1,07 \times 10^2$	$\pm 10,4$
^{240}Pu	642,4	$8,99 \times 10^2$	$\pm 3,0 \times 10$
	687,6	$2,42 \times 10^2$	$\pm 1,6 \times 10$
^{241}Pu	148,6	$2,341 \times 10^6$	$\pm 1,5 \times 10^3$

Tab. 5.16.: Flächeninhalte des Spektrums von Plutonium aus abgebranntem MOX-Brennstoff, der in einem Druckwasserreaktor verwendet wurde.

	645,9 keV / 642 keV	690,8 keV / 687,6 keV	real
$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{240}\text{Pu}}$	1,7 $\pm 0,16$	1,2 $\pm 0,43$	1,58

Tab. 5.17.: Isotopenverhältnis ^{239}Pu zu ^{240}Pu für Plutonium aus abgebranntem MOX-Brennstoff, das in einem Druckwasserreaktor eingesetzt wurde.

	148,6 keV / 152,9 keV	real
$\frac{^{241}\text{Pu}}{^{238}\text{Pu}}$	5,18 $\pm 0,06$	5,32

Tab. 5.18.: Isotopenverhältnis ^{241}Pu zu ^{238}Pu für Plutonium aus abgebranntem MOX-Brennstoff, das in einem Druckwasserreaktor eingesetzt wurde.

	129,3 keV / Δ	144,2 keV / Δ	146,9 keV / Δ	real
$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{238}\text{Pu}}$	12,68 $\pm 0,14$	14,48 $\pm 0,38$	13,48 $\pm 0,45$	15,79
	718 keV / 708,4 keV	718 keV / 742,8 keV	756,4 keV / 742,8 keV	real
$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{238}\text{Pu}}$	16,88 $\pm 3,8$	15,76 $\pm 2,15$	15,83 $\pm 2,97$	15,79

Tab. 5.19.: Isotopenverhältnis ^{239}Pu zu ^{238}Pu für Plutonium aus abgebranntem MOX-Brennstoff, das in einem Druckwasserreaktor eingesetzt wurde. Δ steht für die ^{238}Pu -Linie bei 152 keV

Brüter

Die Flächeninhalte der oben beschriebenen Linien im Spektrum von Plutonium, dass aus einem abgebranntem Kern eines schnellen Brüters gewonnen werden kann, sind in Tabellen 5.20 aufgelistet. Die daraus gewonnenen Erkenntnisse über die Isotopenzusammensetzungen sind in den drei Tabellen 5.21, 5.22 und 5.23 zu finden.

	Energie[keV]	$N_{\gamma,Peak}$	
^{238}Pu	152,9	$5,31 \times 10^5$	$\pm 7,3 \times 10^2$
	708,4	$2,97 \times 10^2$	$\pm 1,7 \times 10$
	742,8	$3,59 \times 10^3$	$\pm 6,0 \times 10$
^{239}Pu	129,3	$2,09 \times 10^5$	$\pm 4,6 \times 10^2$
	144,2	$1,06 \times 10^4$	$\pm 1,0 \times 10^2$
	146,9	$4,39 \times 10^3$	$\pm 6,6 \times 10$
	640,0	$3,36 \times 10^2$	$\pm 1,8 \times 10$
	645,9	$8,5 \times 10^2$	$\pm 2,9 \times 10$
	690,8	$5,2 \times 10$	$\pm 7,1$
	718,0	$1,36 \times 10^2$	$\pm 1,1 \times 10$
	756,4	$1,83 \times 10^2$	$\pm 1,4 \times 10$
^{240}Pu	642,4	$1,24 \times 10^3$	$\pm 3,5 \times 10$
	687,6	$3,15 \times 10^2$	$\pm 1,7 \times 10$
^{241}Pu	148,6	$2,254 \times 10^6$	$\pm 1,5 \times 10^3$

Tab. 5.20.: Aus dem Spektrum von Plutonium aus dem Kern eines schnellen Brüters berechnete Flächeninhalte.

Das Simulationsergebnis ist vergleichbar gut zu interpretieren wie die oben vorgestellten Spektren.

- Das Verhältnis von ^{239}Pu zu ^{240}Pu (Tab. 5.21) kann nicht anhand des Energieintervalls bei 690 keV eindeutig dem untersuchten Plutonium zugeordnete werden. Die Isotopenverhältnisse von anderen Plutonium aus kommerziellen Reaktoren liegen innerhalb der berechneten Unsicherheit.
- Das im Spektrum bestimmte Verhältnis von ^{241}Pu zu ^{238}Pu hat eine relative Abweichung von 3,3% zum realen Wert.
- Das Massenverhältnis von ^{239}Pu zu ^{238}Pu kann mit dem vorgestellten Verfahren im Energiebereich von 129 keV bis 152 keV nur mit starken Abweichungen zum realen Verhältnis bestimmt werden.

	645,9 keV / 642 keV	690,8 keV / 687,6 keV	real
$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{240}\text{Pu}}$	2,14 ±0,2	2,26 ±0,73	2,04

Tab. 5.21.: Isotopenverhältnis ^{239}Pu zu ^{240}Pu für Plutonium aus dem Kern eines schnellen Brütters.

	148,6 keV / 152,9 keV	real
$\frac{^{241}\text{Pu}}{^{238}\text{Pu}}$	3,51 ±0,04	3,63

Tab. 5.22.: Isotopenverhältnis ^{241}Pu zu ^{238}Pu für Plutonium aus dem Kern eines schnellen Brütters.

	129,3 keV / Δ	144,2 keV / Δ	146,9 keV / Δ	real
$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{238}\text{Pu}}$	15,97 ±0,17	18,07 ±0,45	17,81 ±0,54	19,89
	718 keV / 708,4 keV	718 keV / 742,8 keV	756,4 keV / 742,8 keV	real
$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{238}\text{Pu}}$	18,59 ±3,94	19,47 ±2,32	21,123 ±3,74	19,89

Tab. 5.23.: Isotopenverhältnis ^{239}Pu zu ^{238}Pu für Plutonium aus abgebrannten MOX-Brennelement, das in einem schnellen Brüter eingesetzt wurde. Δ steht für die ^{238}Pu -Linie bei 152 keV

5.2.3. Zusammenfassung

Die Ergebnisse zeigen, dass das ausgewählte Verfahren zur Berechnung der Flächeninhalte nur für einige der ausgewählten Linien gut geeignet ist. Bei Linienüberlagerungen ist die Bestimmung der Isotopenvektoren fehlerhaft. Vor allem der Vergleich vom Flächeninhalt der ^{240}Pu -Linie bei $687,6\text{ keV}$ und dem der ^{239}Pu -Linie bei $690,8\text{ keV}$ gibt ein unzuverlässiges Ergebnis. Hier ist die Verwendung von Analyse-Software sinnvoll. Am Spektrum vom waffenfähigen Plutonium konnte gezeigt werden, dass durch das Anpassen von überlagerten Gauß-Funktionen an das Spektrum mit *OrigionPro* die Flächeninhalte von sich überlagernden Linien so getrennt werden können, dass das Isotopenverhältnis korrekt bestimmbar ist.

Besonders hervorzuheben ist die Bestimmung des Verhältnisses von ^{239}Pu (718 keV) zu ^{238}Pu ($742,8\text{ keV}$). Auch wenn die Energiedifferenz der Linien fast 25 keV beträgt, sind die realen Verhältnisse immer in der statistischen Unsicherheit der im Spektrum bestimmten Zusammensetzung. Andere Vergleiche von Linien oberhalb von 700 keV geben auch eine zutreffende Abschätzung, jedoch sind diese nur mit einem größerem Fehlerintervall bestimmbar.

Die Ergebnisse im Energiebereich zwischen 130 keV und 160 keV zeigen den Einfluss der energieabhängigen Abschwächung, also vor allem der Selbstabschirmung. Die Flächeninhalte der benachbarten Linien von ^{238}Pu ($152,9\text{ keV}$) und ^{241}Pu ($148,7\text{ keV}$) sind gut zu berechnen. Die Bestimmung des Isotopenverhältnis mit Formel 5.3 zeigt einen systematischen Fehler. Die relative Abweichung des berechneten Wertes zum realen Wert ist $3,3\% \pm 0,1\%$ zu niedrig. Die relative Abweichung des berechneten Verhältnisses von ^{239}Pu zu ^{238}Pu ($129,4\text{ keV} / 152,9\text{ keV}$) zum realen Verhältnis ist bei allen drei Simulationsergebnissen $-19,7\%$. Diese beiden nahezu konstanten relativen Fehler bei gleichzeitig guten Ergebnissen bei über 700 keV sind verständlich, wenn man den Verlauf des Abschwächungskoeffizienten berücksichtigt.

Durch die gute Bestimmung der Isotopenverhältnisse von ^{239}Pu zu ^{238}Pu und von ^{238}Pu zu ^{241}Pu kann aus jedem Gammaskpektrum die notwendige Information gewonnen werden, aus welchem kommerzielle Reaktortyp das Plutonium stammt.

Auch wenn die einfache Analyse des Spektrums von waffenfähigem Plutonium deutliche Abweichungen zum realem Isotopenverhältnis aufweist, kann der Zweck des Plutoniums nicht verwechselt werden. Dafür ist das Ergebnis (siehe Tab. 5.8) zu unterschiedlich zu den anderen Ergebnissen (Tab. 5.12, Tab. 5.17 und Tab. 5.21).

6. Fazit

Mit Hilfe von Monte Carlo Simulationen konnten Gammaspektren verschiedener Plutoniumproben simuliert werden. Die systematische Untersuchung der Spektren zeigt, dass die vier Plutoniumisotope ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu und ^{241}Pu identifiziert werden können, sofern sie in der Probe vorhanden sind. Die meisten Linien kommen vom ^{239}Pu -Zerfall. ^{238}Pu sticht aufgrund seiner hohen spezifischen Aktivität und seiner charakteristischen Gammastrahlung über 650 keV im Spektrum hervor.

Die Berechnung der Isotopenzusammensetzung nach dem vorgestellten Standardverfahren ist für die Bestimmung des ^{240}Pu -Anteils fehlerhaft. Durch die kombinierte Anpassung mehrerer Gauß-Kurven an das Spektrum gelingt eine sehr gute Abschätzung des ^{240}Pu -Anteils. Trotzdem ist das Verhältnis von ^{240}Pu zu ^{239}Pu nur mit einer verhältnismäßig starken Unsicherheit bestimmbar. So ist nur eine Kategorisierung zu waffenfähigem Plutonium oder nicht waffenfähigem Plutonium möglich und sinnvoll.

In den untersuchten Spektren von Plutonium aus abgebrannten Brennelementen ist die Bestimmung der Massenverhältnisse von ^{239}Pu zu ^{238}Pu zu ^{241}Pu mit geringen Fehlern möglich. Im Energiebereich von 129 keV bis 160 keV sind die relativen Abweichungen zwischen dem realen und dem aus dem Spektrum bestimmten Isotopenvektor nahezu konstant. Ob Rückschlüsse anhand dieser Abweichungen auf die Umstände der Messung gezogen werden können, müssen weitere Untersuchungen zeigen. Systematische Untersuchungen, ob Geometrie- oder Massenänderungen das Identifikationsverfahren beeinflussen, waren im Rahmen dieser Arbeit zeitlich nicht möglich.

Für jedes hier untersuchte Gammaspektrum konnte zweifelsfrei die Herkunft des Isotopengemisches bestimmt werden.

Danksagung

Eine wissenschaftliche Arbeit ist immer das Werk einer Gemeinschaft. Daher möchte ich den Menschen danken, die diese Arbeit maßgeblich ermöglicht haben:

Zuallererst gebührt der Dank Herrn Prof. Gerald Kirchner. Als Betreuer hat er mir die Freiheiten gelassen, die notwendig sind, um eine eigenständige wissenschaftliche Arbeit zu verfassen. Gleichzeitig hat er sich immer die Zeit genommen, mir mit Ratschlägen weiter zu helfen und mich von seinen Erfahrungen profitieren zu lassen.

Auch Herrn Prof. Götz Neuneck möchte ich danken. Zum einen war er sofort bereit, meine Arbeit zu begutachten, zum anderen (und wichtigeren) hat er mir bei seinen Berührungspunkten mit meinem Studium gezeigt, wie Wissenschaftler verantwortlich handeln können.

Ich danke allen Mitarbeitern des ZNF für die angenehme Arbeitsatmosphäre und die Gespräche neben der Arbeit. Besonderer Dank gilt Markus, Malte und Frederik, die mir sehr geholfen haben wissenschaftlich korrekt zu arbeiten. Fabio und Thomas danke ich für ihre Hilfsbereitschaft auch bei *dummen* Fragen. Dank Robert ist mein Optimismus nie verloren gegangen.

Danke gebührt auch meiner Familie (Jenny, Renate, Otto und Joke,) sowie meinen Freunden. Ohne eure Unterstützung wäre diese Arbeit durch sprachlichen Fehlern verunstaltet und mein Studium deutlich trister verlaufen. Dank euch bin ich gespannt auf die Zukunft.

A. Anhänge

A.1. Fehlerfortpflanzung

Sei G bestimmt durch voneinander unabhängigen Größen x_j , so dass $G = G(x_1, x_2, \dots, x_n)$. Nach dem Gauß'schen Fehlerfortpflanzungsgesetz berechnet sich die Standardabweichung des Mittelwerts von G nach:

$$\delta_{\bar{G}} = \sqrt{\sum_{j=1}^n \left(\left(\frac{\partial G}{\partial x_j} \right)_{\bar{x}_j}^2 \cdot \delta_{\bar{x}_j}^2 \right)} \quad (\text{A.1})$$

Mit dem jeweiligen Mittelwert \bar{x}_j und der jeweiligen Standardabweichung $\delta_{\bar{x}_j}$. Mit dieser Formel sind alle Fehler berechneter Werte bestimmt worden.

Für die spezifischen Aktivitäten (Formel 2.3 auf Seite 3)

$$A_{iso} = \frac{\ln(2) N_A}{T_{1/2} m} ,$$

berechnen sich die absoluten Fehler nach:

$$\delta A_{iso} = \ln(2) \sqrt{\left(\frac{N_A}{T_{1/2}^2 m} \cdot \delta T_{1/2} \right)^2 + \left(\frac{1}{T_{1/2} m} \delta N_A \right)^2 + \left(\frac{N_A}{T_{1/2}^2 m^2} \cdot \delta m \right)^2} \quad (\text{A.2})$$

Die Anzahl der Gesamtimpule $N_{\gamma, Peak}$ genügt der Poission“ Verteilung. Daher gilt für ihren Fehler:

$$\delta N_{\gamma, Peak} = \sqrt{N_{\gamma, Peak}} \quad (\text{A.3})$$

Wie die Isotopenverhältnisse mit Formel 5.3 bestimmt werden, wird auf Seite 43 erläutert. Der jeweilige Fehler des Isotopenverhältnisses ist:

$$\delta \left(\frac{M_{iso,1}}{M_{iso,2}} \right) = \frac{\sqrt{\left(\frac{A_{iso,2} \cdot P_{abs}(\gamma_2)}{N_{\gamma, Peak}(E_2) \cdot A_{iso,1} \cdot P_{abs}(\gamma_1)} \cdot \delta N_{\gamma, Peak}(E_1) \right)^2 + \left(\frac{N_{\gamma, Peak}(E_1) \cdot P_{abs}(\gamma_2)}{N_{\gamma, Peak}(E_2) \cdot A_{iso,1} \cdot P_{abs}(\gamma_1)} \cdot \delta A_{iso,2} \right)^2 + \left(\frac{N_{\gamma, Peak}(E_1) \cdot A_{iso,2}}{N_{\gamma, Peak}(E_2) \cdot A_{iso,1} \cdot P_{abs}(\gamma_1)} \cdot \delta P_{abs}(\gamma_2) \right)^2 + \left(\frac{N_{\gamma, Peak}(E_1) \cdot A_{iso,2} \cdot P_{abs}(\gamma_2)}{(N_{\gamma, Peak}(E_2))^2 \cdot A_{iso,1} \cdot P_{abs}(\gamma_1)} \cdot \delta N_{\gamma, Peak}(E_2) \right)^2 + \left(\frac{N_{\gamma, Peak}(E_1) \cdot A_{iso,2} \cdot P_{abs}(\gamma_2)}{N_{\gamma, Peak}(E_2) \cdot (A_{iso,1})^2 \cdot P_{abs}(\gamma_1)} \delta A_{iso,1} \right)^2 + \left(\frac{N_{\gamma, Peak}(E_1) \cdot A_{iso,2} \cdot P_{abs}(\gamma_2)}{N_{\gamma, Peak}(E_2) \cdot A_{iso,1} \cdot (P_{abs}(\gamma_1))^2} \cdot \delta P_{abs}(\gamma_1) \right)^2}}{\left(\frac{M_{iso,1}}{M_{iso,2}} \right)^2} \quad (\text{A.4})$$

A.2. Simulation

Eingabedatei

Vollständige Eingabedatei der in dieser Arbeit vorgestellten Simulation für Plutonium aus einem abgebranntem Brennelement eines mit UO_2 betrieben Leichtwasserreaktors.

```
1 Plutonium aus einem LWR, 50GWd/t, 7 Jahre Kühlzeit
2 c
3 c the detector is pure Ge in 4-6 cm distance shielded by AL
4 c
5 c
6 c Eine Halbkugel mit 2kg Masse und einem Außenradius von 5cm
7 c
8 c Cutoff E<123keV _Intensitäten wie für 1000g
9 c
10 c
11 c          z-axis
12 c          |
13 c          |
14 c          |-----|
15 c          |-----| <--detector
16 c          |
17 c          |
18 c          |
19 c          |
20 c          |-----|
21 c          //~~~~~\\-----> y-axis
22 c          // PU-Halphen-Sphere  \\
23 c
24 c ***** BLOCK 1: CELLS *****
25 c Mat.Nr. dens. geom      parms
26 1 1 -19.816 -10 11 20 imp:p=1 $ Source
27 5 5 -2.7 51 -52 imp:p=1 $ Detector shield
28 6 6 -5.323 -60 imp:p=1 $ Detector
29 90 9 -0.0012 -11 20 imp:p=1 $ air
30 91 9 -0.0012 -51 60 imp:p=1 $ Core
31 99 9 -0.0012 -90 10 52 imp:p=1 $ air
32 999 0 90:-20 imp:p=0 &graveyardard
33 c
34 c
35 c ***** BLOCK 2: SURFACE CARDS *****
36 c
37 c Source
38 10 SPH 0 0 0 5. $ Pu-Source
39 11 SPH 0 0 0 4.6555
40 20 pz 0
41 c Detector similar to "Martin Weil"
42 51 RCC 0 0 10.05 0 0 3.7 2.8 $ inner casing
43 52 RCC 0 0 10 0 0 4.8 3.8 $ outer casing.
44 60 RCC 0 0 10.65 0 0 1.5 1.275 $ Ge-Crystal
45 c universe/graveyard
46 90 RCC 0 0 -.1 0 0 15 5.01 $ graveyard
47 c
48 c
49 c ***** BLOCK 3: DATA CARD *****
50 c ----- materials
51 c Source : Plutonium
52 M1 94238.04p -0.03
53 94239.04p -0.559
```

```

54      94240.04p  -0.226
55      94241.04p  -0.118
56      94242.04p  -0.067
57 M5      13000  1          $ pure Al (density 2.7 g/cm^3)
58 M6      32000  1          $ pure GE (density 5.323 g/cm^3)
59 c air
60 M9      8000  -0.2       $ oxygen
61        7000  -0.8       $ nitrogen
62 c
63 c -----Source Definitions
64 SDEF RAD=d1 CEL=1  ERG=d5 PAR=2  VEC=0 0 1 DIR=d4
65 SI1 4.655 5.
66 SP1 0 1
67 SB4 -31 3.5
68 SI5 L &          Emissionsenergie
69 c Pu-238
70 0.140150 0.152720 0.192910 0.200970 0.203120 0.235900 0.258300 0.299200 &
71 0.705900 0.708420 0.742810 0.766390 0.783400 0.786300 0.804400 0.805600 &
72 0.808250 0.851700 0.880500 0.883230 0.904300 0.926720 0.941900 0.946000 &
73 1.001030 1.041800 1.085400 &
74 c Pu-239
75 0.123228 0.123620 0.124510 0.125210 &
76 0.129296 0.141657 0.143350 0.144201 0.146094 0.158100 0.160190 0.161450 &
77 0.167810 0.171393 0.172560 0.173700 0.179220 0.188230 0.189360 0.195679 &
78 0.203550 0.218000 0.225420 0.237770 0.242080 0.243380 0.244920 0.248950 &
79 0.255384 0.263950 0.265700 0.281200 0.285300 0.297460 0.302870 0.307850 &
80 0.311780 0.316410 0.319680 0.320862 0.323840 0.332845 0.336113 0.341506 &
81 0.345013 0.345014 0.354000 0.361890 0.367073 0.368554 0.375054 0.380191 &
82 0.382750 0.392530 0.393140 0.399530 0.406800 0.411200 0.412300 0.413713 &
83 0.422598 0.426680 0.428400 0.430080 0.445720 0.451481 0.457610 0.461250 &
84 0.463900 0.473900 0.481660 0.487060 0.493080 0.526400 0.550500 0.579400 &
85 0.582890 0.586300 0.596000 0.597990 0.599600 0.606900 0.612830 0.617100 &
86 0.618280 0.619210 0.624780 0.633150 0.637700 0.637800 0.639990 0.645940 &
87 0.649320 0.652050 0.654880 0.658860 0.664580 0.668200 0.670800 0.670990 &
88 0.674050 0.674400 0.690810 0.693200 0.697800 0.701100 0.703680 0.714710 &
89 0.718000 0.720300 0.727900 0.736500 0.747400 0.756400 0.762600 0.763600 &
90 0.766470 0.767290 0.769150 0.769370 0.779400 0.792900 0.805900 0.808400 &
91 0.813700 0.816000 0.821300 0.832500 0.840400 0.843780 0.879200 0.891000 &
92 0.918700 0.940300 0.955600 0.957600 0.968370 0.979700 0.986900 0.992700 &
93 1.005700 1.057300 &
94 c Pu-240
95 0.160308 0.212460 0.538090 0.642350 0.687570 &
96 0.699000 0.873920 0.958000 0.960000 0.967000 &
97 c Pu-241
98 0.148567 0.159955 &
99 c Pu-242
100 0.158800
101 SP5 &          Emissionswahrscheinlichkeiten
102 c Pu-238
103 0.190080 176583.970600 0.121651 741.310533 0.760318 1.900796 15.966688 &
104 9.123822 10.074220 77.932646 988.414044 4181.751726 4.561911 612.056389 &
105 22.809555 11.404777 150.162903 235.698734 30.412740 144.460514 12.165096 &
106 110.246182 89.337423 8.173424 186.278031 41.817517 17.297246 &
107 &
108 c Pu-239
109 0.020524 304.010927 873.550386 722.186296 80941.305970 410.478889 &

```

```

110 221.915149 3630.172677 1526.468369 12.827465 79.530285 1577.778230 37.199649 &
111 1411.021182 0.038482 39.765142 846.612709 139.819372 1064.679619 1372.538786 &
112 7298.827749 15.392958 193.694726 184.715500 93.640497 324.534872 65.420073 &
113 92.357750 1026.197223 339.927830 20.523944 26.937677 24.372184 638.807771 &
114 65.420073 70.551059 330.948604 169.322542 61.571833 695.248619 691.400379 &
115 6336.767852 1436.676112 849.178202 7132.070700 320.686632 9.364050 156.495077 &
116 1141.644411 1128.816945 19933.881060 3912.376913 3322.313510 2629.630384 &
117 4463.957920 75.682045 32.068663 87.226764 0.230894 18805.064110 1564.950765 &
118 298.879941 12.827465 55.158101 112.881695 2429.521926 19.112923 29.118346 &
119 3.591690 0.692683 59.006340 3.399278 11.159895 0.731166 5.387535 1.103162 &
120 7.888891 1.962602 0.500271 21.421867 2.565493 1.539296 12.186092 17.188803 &
121 26.168029 15.521233 11.211205 32.453487 32.838311 32.838311 111.598948 &
122 194.977472 9.107500 84.661271 28.861797 124.426413 21.293592 0.500271 &
123 0.115447 0.115447 6.606145 6.606145 11.544719 0.256549 0.949232 6.567662 &
124 50.668488 1.013370 35.916903 0.622132 1.590606 0.384824 1.039025 44.511305 &
125 0.128275 0.282204 1.667570 1.795845 65.420073 87.226764 1.744535 0.256549 &
126 0.346342 1.552123 0.577236 0.307859 0.705511 0.379693 0.615718 1.718880 &
127 0.461789 0.962060 0.107751 0.641373 0.397651 0.410479 0.359169 0.359169 &
128 0.269377 0.346342 0.230894 0.577236 &
129 c Pu-240
130 7627.895071 550.271037 &
131 2.789305 246.673224 66.412022 0.237186 11.005421 0.948743 0.474372 0.474372 &
132 c Pu-241
133 840227.935200 29557.425390 &
134 c Pu-242
135 29.407384
136 c
137 c
138 c
139 c
140 c ----- Modus
141 mode P
142 PHYS:P 100 0 0 0 0 $ Default
143 c $ 100 MeV brems coh scat no photonic Doppler
144 c CTME 900 $ computing-time cutoff [min]
145 NPS 5E10
146 c NPS 4.49E10 $ 10 std. Messzeit
147 F991:P 60.3
148 F1:p 10
149 F11:p 11
150 E0 .1 8i 1 1.2
151 F8:P 6 $ Energy distribution of pulses in cell 1
152 E8 0 1E-3 4095i 1.2 $ Intervals of the energy to 1.2 MeV
153 FT8 GEB 0.000165429 0.001101 0 $ Gaussian energy broadening = a+bSQRT(E+cE^2)
154 c ----- Energy Cuttof
155 CUT:P J 0.123 $ Energy Cutoff 123keV
156 c ----- Output
157 PRINT 110

```

A.3. Isotopenidentifikation

Waffenfähiges Plutonium

Alle identifizierten Linien des Simulationsergebnisses von waffenfähigem Plutonium im Energiebereich von 225 keV bis 575 keV.

	E_{mess} [keV]	E_{lit} [keV]	$P_{abs,lit}$ [%]	P_{MCNP}	Identifikation
Bereich II	225,5	225,42	1,51(5) $\times 10^{-5}$	$3,29 \times 10^2$	Pu-239
	237,9	237,78	1,44(6) $\times 10^{-5}$	$3,14 \times 10^2$	Pu-239
	243,5	243,38	2,53(5) $\times 10^{-5}$	$5,52 \times 10^2$	Pu-239
	249,1	248,95	7,2(7) $\times 10^{-6}$	$1,57 \times 10^2$	Pu-239
	255,5	255,38	8,0(1) $\times 10^{-5}$	$1,74 \times 10^3$	Pu-239
	264,1	263,95	2,6(1) $\times 10^{-5}$	$5,78 \times 10^2$	Pu-239
	281,3	281,2	2,1(3) $\times 10^{-6}$	$4,58 \times 10$	Pu-239
	285,4	285,3	1,9(4) $\times 10^{-6}$	$4,14 \times 10$	Pu-239
Bereich III	297,6	297,46	4,98(8) $\times 10^{-5}$	$1,09 \times 10^3$	Pu-239
	303	302,87	5,1(4) $\times 10^{-6}$	$1,11 \times 10^2$	Pu-239
	308	307,85	5,5(4) $\times 10^{-6}$	$1,2 \times 10^2$	Pu-239
	311,9	311,78	2,85(7) $\times 10^{-5}$	$5,62 \times 10^2$	Pu-239
	316,6	316,41	1,32(4) $\times 10^{-5}$	$2,88 \times 10^2$	Pu-239
	321	319,68	4,8(5) $\times 10^{-6}$	$1,05 \times 10^2$	Pu-239
		320,86	5,42(7) $\times 10^{-5}$	$1,18 \times 10^3$	Pu-239
	324	323,84	5,39(7) $\times 10^{-5}$	$1,18 \times 10^3$	Pu-239
	333	332,85	4,94(3) $\times 10^{-4}$	$1,08 \times 10^4$	Pu-239
	336,3	336,11	1,12(2) $\times 10^{-4}$	$2,44 \times 10^3$	Pu-239
	341,7	341,51	6,62(14) $\times 10^{-5}$	$1,44 \times 10^3$	Pu-239
		345,2	345,01	5,56(5) $\times 10^{-4}$	$1,21 \times 10^4$
	2,5(25) $\times 10^{-5}$			$5,45 \times 10^2$	Pu-239
	354,2	354	7,3(30) $\times 10^{-7}$	$1,59 \times 10$	Pu-239
	362	361,89	1,22(6) $\times 10^{-5}$	$2,66 \times 10^2$	Pu-239
	367,2	367,07	8,9(2) $\times 10^{-5}$	$1,94 \times 10^3$	Pu-239
	368,7	368,55	8,8(2) $\times 10^{-5}$	$1,92 \times 10^3$	Pu-239
	375,2	375,05	1,554(9) $\times 10^{-3}$	$3,39 \times 10^4$	Pu-239
	380,3	380,19	3,05(6) $\times 10^{-4}$	$6,65 \times 10^3$	Pu-239
	382,9	382,75	2,59(5) $\times 10^{-4}$	$5,65 \times 10^3$	Pu-239
393,1	392,53	2,05(20) $\times 10^{-4}$	$4,47 \times 10^3$	Pu-239	
	393,14	3,48(3) $\times 10^{-4}$	$7,59 \times 10^3$	Pu-239	
399,7	399,53	5,9(3) $\times 10^{-6}$	$1,29 \times 10^2$	Pu-239	
Bereich IV	407	406,8	2,5(5) $\times 10^{-6}$	$5,45 \times 10$	Pu-239
	411,3	411,2	6,8(34) $\times 10^{-6}$	$1,48 \times 10^2$	Pu-239
	413,9	413,71	1,466(11) $\times 10^{-3}$	$3,2 \times 10^4$	Pu-239
	422,7	422,6	1,22(2) $\times 10^{-4}$	$2,66 \times 10^3$	Pu-239
	426,8	426,68	2,33(6) $\times 10^{-5}$	$5,08 \times 10^2$	Pu-239
	430,2	430,08	4,3(1) $\times 10^{-6}$	$9,37 \times 10$	Pu-239
	445,9	445,72	8,8(6) $\times 10^{-6}$	$1,92 \times 10^2$	Pu-239
	451,6	451,48	1,894(16) $\times 10^{-6}$	$4,13 \times 10^3$	Pu-239
	457,7	457,61	1,49(2) $\times 10^{-6}$	$3,25 \times 10$	Pu-239
	461,4	461,25	2,27(2) $\times 10^{-6}$	$4,95 \times 10$	Pu-239
	464	463,9	2,8(3) $\times 10^{-7}$	6,1	Pu-239

481,8	481,66	4,6(2)	$\times 10^{-6}$	$1,0 \times 10^2$	Pu-239
487,1	487,06	2,65(21)	$\times 10^{-7}$	5,78	Pu-239
493,2	493,08	8,7(3)	$\times 10^{-7}$	$1,9 \times 10$	Pu-239
550,6	550,5	4,2(3)	$\times 10^{-7}$	9,16	Pu-239

Plutonium aus einem abgebranntem Brennelement eines Leichtwasserreaktors- Energiebereich von 225 keV bis 575 keV

Alle identifizierten Linien, des LWR-Spektrums im Energiebereich von 225 keV bis 575 keV.

	E_{mess} [keV]	E_{lit} [keV]	$P_{abs,lit}$ [%]	P_{MCNP}	Identifikation
Bereich II	225,5	225,42	1,51(5) $\times 10^{-5}$	$1,94 \times 10^2$	Pu-239
	237,9	237,78	1,44(6) $\times 10^{-5}$	$1,85 \times 10^2$	Pu-239
	243,5	243,38	2,53(5) $\times 10^{-5}$	$3,25 \times 10^2$	Pu-239
	249,1	248,95	7,2(7) $\times 10^{-6}$	$9,24 \times 10^2$	Pu-239
	255,5	255,38	8,0(1) $\times 10^{-5}$	$1,03 \times 10^3$	Pu-239
	264,1	263,95	2,6(1) $\times 10^{-5}$	$3,4 \times 10^2$	Pu-239
Bereich III	297,6	297,46	4,98(8) $\times 10^{-5}$	$6,39 \times 10^2$	Pu-239
	303	302,87	5,1(4) $\times 10^{-6}$	$6,54 \times 10^1$	Pu-239
	308	307,85	5,5(4) $\times 10^{-6}$	$7,06 \times 10^1$	Pu-239
	311,9	311,78	2,85(7) $\times 10^{-5}$	$3,31 \times 10^2$	Pu-239
	316,6	316,41	1,32(4) $\times 10^{-5}$	$1,69 \times 10^2$	Pu-239
	321	319,68	4,8(5) $\times 11^{-6}$	$6,61 \times 10^1$	Pu-239
	324	320,86	5,42(7) $\times 10^{-5}$	$6,95 \times 10^2$	Pu-239
	324	323,84	5,39(7) $\times 10^{-5}$	$6,91 \times 10^2$	Pu-239
	333	332,85	4,94(3) $\times 10^{-4}$	$6,34 \times 10^3$	Pu-239
	336,3	336,11	1,12(2) $\times 10^{-4}$	$1,44 \times 10^3$	Pu-239
	341,7	341,51	6,62(14) $\times 10^{-5}$	$8,49 \times 10^2$	Pu-239
	345,2	345,01	5,56(5) $\times 10^{-4}$	$7,13 \times 10^3$	Pu-239
	345,2	345,01	2,5(25) $\times 10^{-5}$	$3,21 \times 10^2$	Pu-239
	362	361,89	1,22(6) $\times 10^{-5}$	$1,56 \times 10^2$	Pu-239
	367,2	367,07	8,9(2) $\times 10^{-5}$	$1,14 \times 10^3$	Pu-239
	368,7	368,55	8,8(2) $\times 10^{-5}$	$1,13 \times 10^3$	Pu-239
	375,2	375,05	1,554(9) $\times 10^{-3}$	$1,99 \times 10^4$	Pu-239
	380,3	380,19	3,05(6) $\times 10^{-4}$	$3,91 \times 10^3$	Pu-239
	382,9	382,75	2,59(5) $\times 10^{-4}$	$3,32 \times 10^3$	Pu-239
393,1	392,53	2,05(20) $\times 10^{-4}$	$2,63 \times 10^3$	Pu-239	
393,1	393,14	3,48(3) $\times 10^{-4}$	$4,46 \times 10^3$	Pu-239	
399,7	399,53	5,9(3) $\times 10^{-6}$	$7,57 \times 10$	Pu-239	
Bereich IV	407	406,8	2,5(5) $\times 10^{-6}$	$3,21 \times 10$	Pu-239
	411,3	411,2	6,8(34) $\times 10^{-6}$	$8,72 \times 10$	Pu-239
	413,9	413,71	1,466(11) $\times 10^{-3}$	$1,88 \times 10^4$	Pu-239
	422,7	422,6	1,22(2) $\times 10^{-4}$	$1,56 \times 10^3$	Pu-239
	426,8	426,68	2,33(6) $\times 10^{-5}$	$2,99 \times 10^2$	Pu-239
	430,2	430,08	4,3(1) $\times 10^{-6}$	$5,52 \times 10$	Pu-239
	445,9	445,72	8,8(6) $\times 10^{-6}$	$1,13 \times 10^2$	Pu-239
	451,6	451,48	1,894(16) $\times 10^{-6}$	$2,43 \times 10^3$	Pu-239
	481,8	481,66	4,6(2) $\times 10^{-6}$	$5,9 \times 10$	Pu-239

Literaturverzeichnis

- [All13] ALLEN, Backe S. Ramsøy T. Chambers D.M. Day E. Hustveit S. Johansson K. Marsh C. Ramsøy T. Reynolds D. Richings A. Torkildsen H. K.: UK-Norway Initiative (UKNI) approach for the development of a Gamma Ray Attribute Measurement System with an integrated Information Barrier. In: *ESARDA Annual Meeting* (2013)
- [AS09] A. SANTAMARINA, P. Blaise M. Coste A. Courcelle T.D. Huynh C. Jouanne P. Leconte O. Litaize S. Mengelle G. Noguère J-M. Ruggiéri O. Sérot J. Tommasi C. Vaglio J-F. V. D. Bernard B. D. Bernard ; A. SANTAMARINA, Y. R. D. Bernard B. D. Bernard (Hrsg.): *The JEFF-3.1.1 Nuclear Data Library JEFF Report 22 Validation Results from JEF-2.2 to JEFF-3.1.1*. NUCLEAR ENERGY AGENCY, OECD, 2009
- [Can11] CANBERRA INDUSTRIES: Low Energy Germanium Detector (LEGe). In: *Unternehmensbroschüer C 39331* (2011)
- [E.D75] E.D., Carter L.L. C.: *Particle-Transport Simulation with the Monte Carlo Method*. Los Alamos Scientific Lab., N.Mex. (USA), 1975
- [HAS91] HASTINGS A. SMITH, Jr. Marcia C. L. ; KREINER, Doug Reilly Norbert Ensslh Hastings Smith Jr. S. (Hrsg.): *Passive Nondistructive Assay of Nuclear Materials (Chapter 3)*. United States Nuclear Regulatory Commission, 1991
- [Ind07] INDUCTIVELOAD: http://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/e/e0/Cobalt-60_Decay_Scheme.svg. In: *Wikimedia Commons* (05.10.2007)
- [Int08] INTERNATIONAL PANEL ON FISSILE MATERIALS (IPFM): *Global Fissile Material Report 2008: Scope and Verification of a Fissile Material (Cutoff) Treaty*. www.fissilematerials.org, 2008
- [JHH] J. H. HUBBELL, S. M. S.: Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients from 1 keV to 20 MeV for Elements Z = 1 to 92 and 48 Additional Substances of Dosimetric Interest. In: *National Institute of Standards and Technology's web site; U.S. Department of Commerce*
- [JKS01] J. K. SHULTIS, R. E. F.: An MCNP Primer. In: *Dept. of Mechanical and Nuclear Engineering Kansas State University Manhattan, KS 66506* (2001)
- [JSH05] JOHN S HENDRICKS, Gregg W. M.: Pulse-Height Tallies with Variance Reduction. (2005)
- [KD88] KLAUS DEBERTIN, Richard G. H.: *Gamma- and x-ray spectrometry with semiconductor detectors*. North-Holland, 1988
- [Kir85] KIRCHNER, Gerald: *Ein neuer Toxizitätsindex zur Ermittlung des Gefährdungspotentials endgelagerter radioaktiver Abfälle*, Universität Bremen, Diss., 1985
- [Kir13] KIRCHNER, Gerald: *Persönliche Mitteilung*. 2013

- [Kli09] KLINGBERG, Franziska: *Capability to determine shielding around radioactive substances using gamma ray spectrometry*, Universität Hamburg, Diplomarbeit, 2009
- [Kno89] KNOLL, Glenn F.: *Radiation Detection and Measurement*. 2. John Wiley & Sons, 1989
- [Kob91] KOBLINGER, Ivan Lux L.: *Monte Carlo Particle Transport Methods: Neutron and Photon Calculations*. CRC Press, 1991
- [LSB78] LEDERER, Michael C. ; SHIRLEY, Virginia S. ; BROWNE, Edgardo: *Table of isotopes*. 7. Wiley, 1978
- [MC11] M.B. CHADWICK, P. Oblozinsky M.E. Dunn Y. Danon A.C. Kahler D.L. Smith B. Pritychenko G. Arbanas R. Arcilla R. Brewer D.A. Brown R. Capote A.D. Carlson Y.S. Cho H. Derrien-K. Guber G.M. Hale S. Hoblit S. Holloway T.D. Johnson T. Kawano B.C. Kiedrowski H. Kim S. Kunieda N.M. Larson L. Leal J.P. Lestone R.C. Little E.A. McCutchan R.E. MacFarlane M. MacInnes C.M. Mattoon R.D. McKnight S.F. Mughabghab G.P.A. Nobre G. Palmiotti A. Palumbo M.T. Pigni V.G. Pronyaev R.O. Sayer A.A. Sonzogni N.C. Summers P. Talou I.J. Thompson A. Trkov R.L. Vogt S.C. van der Marck A. Wallner M.C. White D. Wiarda P.G. Y. M. Herman H. M. Herman: ENDF/B-VII.1: Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data. In: *Nucl. Data Sheets* 112 (2011), S. 2887–2996
- [MG11] MALTE GÖTTSCHE, Götz Neuneck Frederik P. Martin B. Kalinowski K. Martin B. Kalinowski: Attribute Information Barrier: Technical issues arising from a multinational approach and dependence on transparency, 2011. – UK Norway Workshop
- [PRSZ09] POVH, B. ; RITH, K. ; SCHOLZ, C. ; ZETSCHKE, F.: *Teilchen und Kerne*. 8. Springer, 2009
- [SF90a] STEVE FETTER, Frank von H.: US and Soviet reports from a cooperative verification experiment. In: *Science & Global Security* 1 (1990), Nr. 3-4, 323-327. http://scienceandglobalsecurity.org/archive/1990/01/us_and_soviet_reports_from_a_c.html
- [SF90b] STEVE FETTER, Marvin Miller Robert Mozley Oleg F. Prilutsky Stanislav N. Rodionov Roald Z. S. Valery A. Frolov F. Valery A. Frolov: Detecting Nuclear Warheads. In: *Science & Global Security*, Volume 1 (1990), S. 225–302
- [Tea03a] TEAM, X-5 Monte C.: *MCNP - A General Monte Carlo N- Particle Transport Code, Version 5 Volume I: Overview and Theory*. Los Alamos National Laboratory, April 24, 2003
- [Tea03b] TEAM, X-5 Monte C.: *MCNP- A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5 Volume II: User's Guide*. Los Alamos National Laboratory, April 24, 2003
- [Wei13] WEIL, Martin: *Abrüstungsverifikation: Gammaskpektrometrie für Informationsbarrieren*, Universität Hamburg, Diplomarbeit, 2013