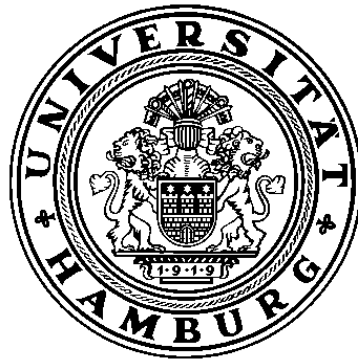


Neutronen-induzierte prompt Gamma-Signaturen
in Plutonium-239 und Plutonium-240,
sowie in Uran-235 und Uran-238

Frederik Johann Mikael Postelt



Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
an der Fakultät für Mathematik, Informatik und Naturwissenschaften
Fachbereich Physik
der Universität Hamburg

Hamburg, 2017

geschrieben am

Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum für Naturwissenschaft und Friedensforschung

Gutachter:

Prof. Dr. **Gerald Kirchner**, Zentrum für Naturwissenschaft und Friedensforschung

Prof. Dr. **Götz Neuneck**, Institut für Friedensforschung und Sicherheitspolitik

Vorsitzende der Betreuungskommission:

Prof. Dr. **Caren Hagner**, Institut für Experimentalphysik

Vorsitzende der Prüfungskommission:

Prof. Dr. **Daniela Pfannkuche**, I. Institut für Theoretische Physik

Stellvertretender Vorsitzender:

Prof. Dr. **Jürgen Scheffran**, Institut für Geographie

Datum der Disputation: 17.11.2017

Zusammensetzung der Prüfungskommission: Die fünf oben Genannten

Vorsitzender Fach-Promotionsausschusses Physik: Prof. Dr. Wolfgang Hansen

Leiter des Fachbereichs Physik: Prof. Dr. Michael Potthoff

Dekan der Fakultät MIN: Prof. Dr. Heinrich Graener

Englischer Titel der Dissertation:

Neutron-induced prompt gamma signatures in Plutonium-239, Plutonium-240, Uran-235 and Uran-238

Hiermit erkläre ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Dissertationsschrift selbst verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

Hamburg, 2017

Frederik J. M. Postelt

Unsere Aufgabe ist es, Frieden zu schaffen.

Alva Myrdal [1]

Zusammenfassung

Kernwaffen stellen nicht nur potentiell eine Bedrohung für einzelne Staaten und deren Zivilbevölkerungen dar, sondern auch eine existentielle Bedrohung für die gesamte Menschheit. Es gibt deshalb viele Stimmen, die sich für die Abrüstung von Kernwaffen einsetzen. Schon 1968 haben sich die Mitgliedsstaaten des nuklearen Nichtverbreitungsvertrags dazu verpflichtet, über die Abrüstung der Kernwaffen unter strikter und effektiver internationaler Kontrolle zu verhandeln. Dies ist bisher nur eingeschränkt geschehen. Um eine Kernwaffe unabhängig und eindeutig als solche zu identifizieren, bieten sich verschiedene nukleare Messmethoden an, wie zum Beispiel die passive Gammaskopie, deren Eignung allerdings an Grenzen stößt, wenn externe Abschirmung vorhanden ist.

In der vorliegenden Arbeit wird das Potential von neutroneninduzierter Gammaskopie als mögliche wertvolle Ergänzung zu etablierten Messmethoden untersucht. Die Isotope Plutonium-239 und Plutonium-240, sowie Uran-235 und Uran-238 können durch Neutronen nicht nur gespalten werden, sondern diese auch einfangen, wobei in Folge überschüssige Energie im Atomkern als Gammastrahlung abgegeben wird. Diese Gammastrahlung ist charakteristisch für das emittierende Isotop und hat teilweise sehr hohe Energien, die Selbstabsorption im Spaltmaterial und externe Abschirmung mit einer höheren Wahrscheinlichkeit penetriert als nieder-energetische Gammastrahlung. Diese Neutronen-induzierten prompten Gamma-Signaturen sind also potentiell geeignet die vier Isotope auch hinter unbekannter Abschirmung eindeutig zu identifizieren.

Um entsprechende Experimente vorzubereiten, wurden die hoch-energetischen Gamma-Signaturen nach Neutroneneinfängen in den Isotopen Plutonium-239 und Plutonium-240, sowie die von Uran-235 und Uran-238 analytisch abgeschätzt. Dabei wurden verschiedene Isotopenzusammensetzungen und Neutronenquellen berücksichtigt. Der Fokus lag dabei auf waffengrädigem Material und drei Arten von Neutronenquellen: Elektronischen Neutronengeneratoren, radioaktiven Quellen und Forschungsreaktoren. Thermische Neutronen sind hierfür sehr viel besser geeignet als schnelle Neutronen, da sie sowohl absolut, als auch relativ zu den Konkurrenzprozessen deutlich höhere Wechselwirkungsquerschnitte haben. Die analytischen Abschätzungen haben weiterhin gezeigt, dass die Signaturen in waffengrädigem Plutonium deutlich stärker sind als in waffengrädigem Uran, da die spezifischen Wechselwirkungsquerschnitte für die messbaren Gammalinien aus Neutroneneinfängen in Plutonium höher sind.

In dieser Arbeit wurden Messungen mit verschiedenen Spaltmaterial-Targets vorgenommen: mit abgereichertem Uran in Kombination mit thermalisierten Neutronen aus einem Deuterium-Deuterium- und einem Deuterium-Tritium Neutronengenerator; mit einer sehr kleinen Menge Plutonium-239 an einem Forschungsreaktor; und mit verschiedenen Spaltmaterial-Targets und einer thermalisierten Americium-241/Beryllium Quelle, darunter dreistellige Grammengen waffengrädigen Plutoniums und Urans. Die Messergebnisse werden in Relation zu den aus den analytischen Abschätzungen zu erwartenden Neutroneneinfangsignaturen gesetzt.

Den analytischen Abschätzungen nach sind die Neutroneneinfangsignaturen der untersuchten Spaltmaterial-Targets jeweils niedriger als der gemessene aktive Strah-

lungshintergrund, also der Hintergrund an Gammastrahlung im Versuchsraum, der durch die Neutronen der Neutronenquelle hervorgerufen wird. In Übereinstimmung mit diesen Abschätzungen konnten in keinem der Experimente die Isotope Plutonium-239, Plutonium-240, Uran-235 oder Uran-238 gemessen werden. Dies ist vor allem auf das Verhältnis der niedrigen Anzahl an Neutroneneinfangsreaktionen in den vier Isotopen und den jeweiligen aktiven Strahlungshintergrund zurückzuführen.

Mit kollimierten Quellen könnte gleichzeitig der aktive Strahlungshintergrund reduziert und die Neutronenflussdichte im Target und damit die Anzahl der Neutroneneinfänge erhöht werden, da die Neutronen dann auf das Spaltmaterial-Target gebündelt würden und weniger in den umgebenden Materialien reagierten. Ergänzend oder alternativ könnten stärkere Neutronenquellen und größere Spaltmaterial-Targets verwendet werden. In zukünftigen Forschungsexperimenten sollten größere Mengen waffenfähigen Spaltmaterials an einem Forschungsreaktor und mit thermalisierten Neutronen aus einem kollimierten Deuterium-Deuterium Neutronengenerator untersucht werden.

Abstract

Nuclear weapons do not only pose a potential threat to countries and their civilian populations, but also an existential threat to the entire human kind. Therefore, there are many voices pleading for the disarmament of nuclear weapons. Already in 1968, all states party to the nuclear Non-Proliferation Treaty committed themselves to negotiations on a treaty on general and complete disarmament under strict and effective international control. Up to now, this has only been done to a limited extent. In order to identify a nuclear weapon independently and unambiguously, various nuclear measurement methods, such as passive gamma spectroscopy, are suitable. However, their suitability is limited when external shielding is present.

The present study investigates the potential of neutron-induced gamma spectrometry as a possible valuable addition to established measurement methods. The isotopes of plutonium-239, plutonium-240, uranium-235 and uranium-238 can not only be fissioned by neutrons, but they can also capture them. As a result, excess energy in the compound nucleus is emitted as gamma radiation. This gamma radiation is characteristic of the emitting isotope, some of which have very high energies that penetrates self-absorption in the fissile material as well as external shielding with a higher probability than low-energy gamma radiation. Thus, these neutron-induced prompt gamma signatures are potentially capable of unambiguously identifying the four isotopes behind unknown shielding.

In order to prepare experiments, the high-energy gamma signatures of neutron captures in the isotopes plutonium-239, plutonium-240, uranium-235 and uranium-238 were analytically estimated. Various isotope compositions and neutron sources were considered. The focus was on weapons-grade fissile material and three types of neutron sources: electronic neutron generators, radioactive sources and research reactors. Thermal neutrons are much more suitable than fast neutrons, since they have significantly higher interaction cross sections, in both absolute terms and relative to the competing processes. The analytical estimates have also shown that the signatures in weapons-grade plutonium are significantly stronger than in weapons-grade uranium. This is due to the higher specific reaction cross sections for the measurable gamma peaks from neutron capture in plutonium.

Three series of measurements with different fission material targets were conducted: one with a depleted uranium target and thermalised neutrons from a deuterium-deuterium and a deuterium-tritium neutron generator; one with a very small amount of plutonium-239 in the neutron beam of a research reactor; and one with a number of fission material targets and a thermalised americium-241/beryllium source. The latter targets included three-digit gram quantities of weapons-grade plutonium and uranium. The measurement results are compared to the analytically estimated neutron capture signatures.

According to the analytical estimates, the neutron capture signatures of the measured fission material targets are lower than the respective measured active radiation background. The latter being the neutron-induced background of gamma radiation during the experiments. In accordance with the estimates, neither of the four isotopes could be detected. This is mainly due to the ratio of the low number of neutron capture reactions in the four isotopes and the respective active radiation

background.

In the future, the neutrons could be focused onto the fission material target with collimated sources in order to increase this ratio. Such, less neutrons react with the surrounding materials, too. Therefore, the active radiation background could be reduced, while the neutron flux density in the target and thus the number of neutron capture reactions could be increased. In addition or alternatively, stronger neutron sources and larger fission material targets might be used. In future research experiments, larger quantities of nuclear fissile material should be investigated using the neutron beam of a research reactor or thermalised neutrons from a collimated deuterium-deuterium neutron generator.

Danksagung

Ich danke allen, die in jedweder Form Anteil an diesem Forschungsprojekt hatten und zu dem erfolgreichen Abschluss beigetragen haben.

Die Deutsche Stiftung Friedensforschung hat mit der Förderung des Forschungsprojekts *Machbarkeitsstudie zur Identifizierbarkeit von nuklearen Sprengköpfen mit Gamma-Quanten mit einer Attribut-Informationsbarriere* den Großteil der finanziellen Mittel bereitgestellt. Das Projekt wurde am Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum für Naturwissenschaft und Friedensforschung der Universität Hamburg durchgeführt. Ich bin dem Zentrum dankbar für die ganze Unterstützung wie zum Beispiel die Bereitstellung eines Arbeitsplatzes über die gesamte Dauer der Promotion, ein neunmonatiges Stipendium als Anschubfinanzierung und neun Monate Anstellung nach Auslaufen des DSF Projektes.

Ich danke Gerald Kirchner, Götz Neuneck und Caren Hagner für die Betreuung der Promotion und für die frühzeitige Betreuungszusage gegenüber der Deutschen Stiftung Friedensforschung, sowie für alle weitere Unterstützung während der gesamten Promotion und viele hilfreiche Anmerkungen. Dies gilt insbesondere für Gerald Kirchner, den Erstbetreuer dieser Arbeit, der auch die Kontakte zum Bundesamt für Strahlenschutz, zum *Joint Research Centre* Karlsruhe und zur Radiochemie München hergestellt hat.

Martin Kalinowski hat das Thema und die Promotion vorgeschlagen und mich während des Physikstudiums, insbesondere vor und während der Diplomarbeit gefordert und gefördert. Malte Göttsche ist nicht nur ein sehr guter Freund, sondern hatte mit dem Schwesterprojekt, das auch durch die Deutsche Stiftung Friedensforschung gefördert wurde in vielerlei Hinsicht schon den Boden geebnet.

Fabio Zeiser und Erik Buhmann haben das Forschungsprojekt als studentische Hilfskräfte unterstützt und viel dazu beigetragen. Fabio hat einen signifikanten Anteil zum *Mathematica* Skript beigetragen und den Kontakt zu Stefan Oberstedt hergestellt.

Die Messung von neutroneninduzierter Gammastrahlung in Plutonium am *Budapest Neutron Centre* (BNC) wurde ermöglicht von Tamás Belgya und László Szentmiklósi, deren Erfahrung und Expertise zu neutroneninduzierter Gammamessungen darüber hinaus das Projekt sehr bereichert haben. Die Messungen am BNC wurden parallel zu einem Prompte-Spalt-Gamma-Spektrometrie-Experiment an der gleichen Plutoniumprobe aufgenommen. Dieses Spaltexperiment wurde durchgeführt von Stephan Oberstedt, Angélique Gatera, Marzio Vidali (alle *Institute for Reference Materials and Measurements* (IRMM) in Geel, Belgien), Andreas Oberstedt (Chalmers Göteborg), Matthieu Lebois und Qi Liqiang (beide *Institut de Physique Nucléaire* (IPN) Orsay, Frankreich). Ich bin allen Beteiligten, allen voran Stephan Oberstedt sehr dankbar dafür, dass wir uns ihrem Spaltexperiment anschließen durften!

Mit den Kollegen Olaf Schumann, Theodor Köble und Wolfgang Rosenstock vom Fraunhofer-Institut für Naturwissenschaftlich-Technische Trendanalysen INT in Euskirchen wurde eine erste aktive Messung mit einem elektrischen Neutronengenerator an angereichertem Uran durchgeführt und blieben auch darüber hinaus kompetente Gesprächspartner. Ich danke allen Beteiligten für die wertvollen Erfah-

rungen, die ich dadurch gewinnen konnte.

Christoph Lierse von Gostomski von der Radiochemie München (RCM) stellte die radioaktive Neutronenquelle für die Messungen in Karlsruhe zur Verfügung. Dafür bin ich ihm und seinen Mitarbeitern sehr dankbar. Die Messungen an waffengrädigem Spaltmaterial am *Joint Research Centre* Karlsruhe wurden insbesondere ermöglicht von Klaus Lützenkirchen und Ralph Maier und zusammen mit Jozsef Zsigrai und Ludwig Holzleitner durchgeführt. Ich bin ihnen und ihren Kollegen Jouni Rautio und Joachim Küst aus der Werkstatt sowie allen Kollegen des Strahlenschutzes, des Sicherheitsdienstes und der Verwaltung für die lebenswürdige Aufnahme und Unterstützung sehr dankbar.

Uwe-Karsten Schkade vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) in Berlin ist ein verlässlicher Ansprechpartner für Fragen der passiven Gammaskopie und Hans-Jürgen Lange von Canberra Deutschland für Fragen zu Detektoren im Allgemeinen, insbesondere wenn es um spezifische Probleme aktiver Messungen geht.

Weitere wertvolle Kooperationspartner waren Ole Reistad, Tore Ramsøy und Paula Nunez vom *Institutt for Energiteknikk* (IFE) und Steinar Høibråten vom *Norwegian Defence Research Establishment* (FFI). Formal war das Seminar Abrüstungsverifikation die engste Kooperation, bei dem Hassan Elbahtimy vom *King's College London* eine wichtige Rolle bei der Planung und Leitung innehatte. Darüber hinaus gab es einen Austausch über aktuelle Forschungsfragen der Abrüstungsverifikation, sowohl was den physikalisch-technischen Bereich angeht, als auch den rüstungspolitisch konzeptionellen.

Ich danke der *European Safeguards Research and Development Association* (ESARDA), dem Forschungsverbund für Naturwissenschaft, Abrüstung und Internationale Sicherheit (FONAS), der Deutschen Physikalischen Gesellschaft (DPG) und dem Netzwerk Nukleare Abrüstungsverifikation (NAV) für die Möglichkeit, meine Arbeit auf ihren Konferenzen vorzustellen und für die vielen wertvollen Einblicke und Einsichten die ich dabei gewinnen und Diskussionen, an denen ich teilhaben konnte.

Die folgenden Computerprogramme haben mir die Arbeit enorm erleichtert: *Wolfram Mathematica*, *Origin* (*OriginLab Corporation*), *Cambio* (*Sandia Corporation*), *Gamma Viewer* (von László Szentmiklósi), *Canberra Genie 2000*, das *Java-based Nuclear Data Information System* (JANIS 4.0) der *Nuclear Energy Agency* (NEA), *Microsoft Excel*, die Textsatzsysteme *LaTeX* und *LyX*, der freie Funktionsplotter *gnuplot* und das freie Literaturverwaltungsprogramm *JabRef*.

Sehr hilfreich war die Online-Verfügbarkeit vieler Publikationen, insbesondere der CapGam und PGAA Datenbanken, sowie die Bücher von Lederer/Shirley [2] und W. Wahl [3].

Ich bin allen Kollegen am ZNF für jedwede Unterstützung dankbar, insbesondere Robert Steinbeck für seine Hilfe in allen finanziellen und verwaltungstechnischen Aspekten, sowie der Verwaltung der Universität Hamburg. Ich danke meiner Familie und meinen Freunden und darüber hinaus Swetlana Weingart, Malte Götsche, Fabio Zeiser, Moritz Kütt und Christian Alwardt für das Korrektur lesen.

Vorwort

Die vorliegende Arbeit wurde ermöglicht durch die Deutsche Stiftung Friedensforschung (DSF), die das Forschungsprojekt finanziell gefördert hat. Neben dem Forschungsprojekt *Machbarkeitsstudie zur Identifizierbarkeit von nuklearen Sprengköpfen mit Gamma-Quanten mit einer Attribut-Informationsbarriere*, in dessen Rahmen ein signifikanter Anteil dieser Arbeit durchgeführt wurde, hat die Deutsche Stiftung Friedensforschung ein zweites Projekt am Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum für Naturwissenschaft und Friedensforschung gefördert: *Kernwaffenauthentifizierung mit Hilfe einer Attribut-Informationsbarriere: Eine Durchführbarkeitsstudie*. Die Ergebnisse dieser beiden von der Deutschen Stiftung Friedensforschung geförderten Projekte sind in einem gemeinsamen Forschungsbericht zusammengefasst worden:

Malte Götttsche, Frederik Postelt, Gerald Kirchner, *Verifikation nuklearer Abrüstung: Herausforderungen, Lösungsansätze und Grenzen der Kernwaffenauthentifizierung*, Deutsche Stiftung Friedensforschung, (eingereicht 2016)

Darüber hinaus ist ein Teil der Ergebnisse, insbesondere bezüglich der analytischen Abschätzungen bereits in einem begutachteten Fachzeitschriftenartikel veröffentlicht worden:

Frederik Postelt, Fabio Zeiser, Gerald Kirchner, *Analytical estimate of high energy gamma-ray emissions from neutron induced reactions in U-235, U-238, Pu-239 and Pu-240*, *ESARDA bulletin*, Nr. 52, Seiten 25-34, Juni 2015

In dieser Arbeit wird konsistent der Dezimalpunkt '.' als Dezimaltrennzeichen verwendet und nicht das Dezimalkomma ','. Das Dokument wurde auch auf seine elektronische Lesbarkeit optimiert. Soweit möglich wurden alle Grafiken als Vektorgrafiken implementiert, wodurch sie sehr gut vergrößert werden können. Die Titel der referenzierten Quellen sind anklickbare Hyperlinks zu den entsprechenden Präsenzen im Internet, wenn diese verfügbar sind. Auch die Verweise innerhalb des Dokuments sind anklickbare Hyperlinks, zum Beispiel auf die Literaturquellen, Kapitel, Abschnitte, Abbildungen und Tabellen.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	vii
Abstract	ix
Danksagung	xi
Vorwort	xiii
1 Verifizierte Abrüstung von Kernwaffen	1
1.1 Kernwaffen und der Nichtverbreitungsvertrag	1
1.2 Stand der nuklearen Abrüstung	2
1.3 Verifikation nuklearer Abrüstung	7
1.4 Kernwaffenauthentifizierung mit Informationsbarrieren	9
1.5 Geschichte der Kernwaffenauthentifizierung	12
1.6 Aktive Messungen zur Kernwaffenauthentifizierung	14
1.7 Forschungsfrage	15
1.8 Stand der Forschung	16
2 Physikalische Grundlagen	21
2.1 Gammaspektroskopie	21
2.2 Strahlender Neutroneneinfang	23
3 Analytische Abschätzungen	29
3.1 Annahmen	29
3.1.1 Neutronenquellen	30
3.1.2 Spaltmaterial-Target	33
3.1.3 Gammadetektor	35
3.2 Methodik	36
3.2.1 Neutronenflussdichte	36
3.2.2 Neutronenwechselwirkungen	37
3.3 Ergebnisse der analytischen Abschätzungen	50
3.3.1 Forschungsreaktor München-II	51
3.3.2 Deuterium-Deuterium Neutronengenerator	55
3.3.3 Americium-241/Beryllium Neutronenquelle	62
3.4 Zwischenfazit: Analytische Abschätzungen	68
4 Messungen und Ergebnisse	71
4.1 Abgereichertes Uran und Neutronengeneratoren	72
4.1.1 Aktiver Hintergrund	74
4.1.2 Abgereichertes Uran mit Deuterium-Tritium Neutronengenerator	75

4.1.3	Abgereichertes Uran mit Deuterium-Deuterium Neutronenge- nerator	77
4.1.4	Zwischenfazit: Abgereichertes Uran und Neutronengeneratoren	80
4.2	Plutonium-239 und Forschungsreaktor	81
4.2.1	Versuchsanordnung	81
4.2.2	Hintergrund	82
4.2.3	Plutonium-239	83
4.2.4	Zwischenfazit: Plutonium-239 und Forschungsreaktor	86
4.3	Radioaktive Neutronenquelle	87
4.3.1	Versuchsanordnung	87
4.3.2	Hintergrund	90
4.3.3	Plutonium	92
4.3.4	Uran	97
4.3.5	Zwischenfazit: Radioaktive Neutronenquelle	102
4.4	Zusammenfassung potentiell störender Isotope	103
5	Fazit und Ausblick	105
5.1	Fazit	105
5.2	Ausblick	107
	Literaturverzeichnis	109
	Abbildungsverzeichnis	132
	Tabellenverzeichnis	133
	Nomenklatur	135
A	Ergänzungen zu den Experimenten	139
A.1	Elektronische Neutronengeneratoren	139
A.2	Radioaktive Neutronenquelle	141
B	Ergänzungen zu den Abschätzungen	145
B.1	Weitere Ergebnisse der analytischen Abschätzungen	145
B.2	Wechselwirkungsquerschnitte	149
B.3	Hoch-energetische Gamma-Emissionen nach Neutroneneinfängen	150
B.4	Monte Carlo N-Particle code Ausgabe	154
B.5	Mathematica Skripte	172
B.5.1	Analytische Abschätzung für jeweils ein Isotop	172
B.5.2	Kombination zweier Isotope	226
B.5.3	Attenuation	234

Kapitel 1

Verifizierte Abrüstung von Kernwaffen

1.1 Kernwaffen und der Nichtverbreitungsvertrag

Der größte militärische Konflikt in der Geschichte der Menschheit hat auch die zerstörerischste Waffe hervorgebracht. Gegen Ende des zweiten Weltkrieges wurde in den Vereinigten Staaten von Amerika (USA) die Atombombe entwickelt, auch aus Angst vor einem entsprechenden Programm im nationalsozialistischen deutschen Reich. Die Zerstörungskraft der ersten getesteten Bombe beim *Trinity-Test* am 16. Juli 1945 erschreckte viele der beteiligten Experten. Am 6. und 9. August desselben Jahres wurden zwei Atombomben auf die Städte Hiroshima und Nagasaki im japanische Kaiserreich abgeworfen. In Hiroshima starben dabei nach amerikanischen Angaben 70 000 – 80 000 Menschen, in Nagasaki über 35 000 und jeweils noch einmal mindestens so viele wurden verwundet [4]. Noch heute leiden viele der Überlebenden, die Hibakusha und ihre Nachfahren an den Folgen der Strahlenkrankheit.

In der Folge entwickelten die Sowjetunion (1949), das Vereinigte Königreich (1952), die Republik Frankreich (1960) und die Volksrepublik China (1964) eigene Atomwaffen. Insbesondere zwischen den USA und der Sowjetunion entspann sich ein nuklearer Rüstungswettlauf, der die Anzahl an Atomwaffen und deren Zerstörungskraft rasant in die Höhe schnellen ließ. Beide Staaten produzierten zehntausende von Kernwaffen, mehr als nötig waren, um den Gegner, beziehungsweise sogar die ganze Welt zu vernichten. Diese Situation bezeichnet man auch im Deutschen als *Overkill*. 1961 löste die Sowjetunion mit dem Test der Fusionsbombe *AN602* die größte jemals von Menschen initiierte Explosion (bis heute) aus. Die heute als *Zar-Bombe* bezeichnete Waffe hatte eine Sprengkraft von über 50 Megatonnen, das ist mehr als das 3000-fache der Kernwaffe *Little Boy*, die am 6. August 1945 auf Hiroshima abgeworfen worden war. Ob der drastischen und unabsehbaren Folgen von Atombombeneinsätzen versuchten die Supermächte USA und Sowjetunion eine direkte militärische Konfrontation zu vermeiden, mannigfaltigen Unstimmigkeiten und Konflikten zum Trotz. Dieses Gleichgewicht des Schreckens drohte mehrmals umzukippen, unter anderem während der *Cuban Missile Crisis* im Oktober 1962 [5].

Um die weitere Verbreitung von Kernwaffen einzudämmen, wurde der Nichtverbreitungsvertrag (NVV) verhandelt, der 1970 in Kraft getreten ist und der die

unterzeichnenden Staaten in zwei Gruppen unterteilt. Die erste Gruppe besteht aus den oben genannten fünf Staaten, die zum Zeitpunkt der Vertragsverhandlungen bereits Kernwaffen besaßen, den Kernwaffenstaaten (KWS), wobei Frankreich und China den Nichtverbreitungsvertrag erst 1992 ratifiziert haben. Diese fünf Staaten sind gleichzeitig die Siegermächte des zweiten Weltkrieges und ständige Mitglieder im Sicherheitsrat der Vereinten Nationen, wo sie ein Vetorecht gegen jedwede Entscheidungen besitzen. Alle anderen Unterzeichner sind Nichtkernwaffenstaaten (NKWS) und verpflichten sich in Artikel II des Nichtverbreitungsvertrages dazu sich keine Kernwaffen zu beschaffen:

*Each non-nuclear-weapon State Party to the Treaty undertakes not to receive the transfer from any transfer or whatsoever of nuclear weapons or other nuclear explosive devices or of control over such weapons or explosive devices directly, or indirectly; not to manufacture or otherwise acquire nuclear weapons or other nuclear explosive devices; and not to seek or receive any assistance in the manufacture of nuclear weapons or other nuclear explosive devices.*¹ [7]

Analog verpflichten sich die Kernwaffenstaaten in Artikel I des Nichtverbreitungsvertrages keine Kernwaffen weiterzugeben.

Die Nichtverbreitung ist die erste Säule des Nichtverbreitungsvertrages. Im Gegenzug werden den Nichtkernwaffenstaaten Hilfe bei der zivilen Nutzung der Kernenergie (Artikel IV und V, zweite Säule) und in Artikel VI Verhandlungen zur nuklearen Abrüstung (dritte Säule) zugesichert:

Each of the Parties to the Treaty undertakes to pursue negotiations in good faith on effective measures relating to cessation of the nuclear arms race at an early date and to nuclear disarmament, and on a treaty on general and complete disarmament under strict and effective international control. [7]

Es sollen in naher Zukunft und in redlicher Absicht effektive Maßnahmen ergriffen werden, um das nukleare Wettrüsten zu beenden und ein Vertrag zur allgemeinen und vollständigen nuklearen Abrüstung unter strenger und wirksamer internationaler Kontrolle verhandelt werden. Eine offensichtliche Interpretation legt nahe, dass nicht nur abgerüstet, sondern dies auch international verifiziert werden soll.

1.2 Stand der nuklearen Abrüstung

Sowohl die USA, als auch die Sowjetunion rüsteten auch nach dem Inkrafttreten des Nichtverbreitungsvertrages sowohl qualitativ, als auch quantitativ weiter auf. Erst seit Mitte der 1980er Jahre kam es zumindest quantitativ zu einer signifikanten Abrüstung von Kernwaffen. Gleichzeitig wurde und wird weiter qualitativ aufgerüstet. *Fat Man*, die Atombombe, die auf Nagasaki abgeworfen wurde und eine Sprengkraft

¹Vertragstext des nuklearen Nichtverbreitungsvertrages, auf Englisch *nuclear Non-Proliferation Treaty, NPT*, auf Deutsch auch Atomwaffensperrvertrag genannt. Das Auswärtige Amt bietet eine deutsche Übersetzung [6].

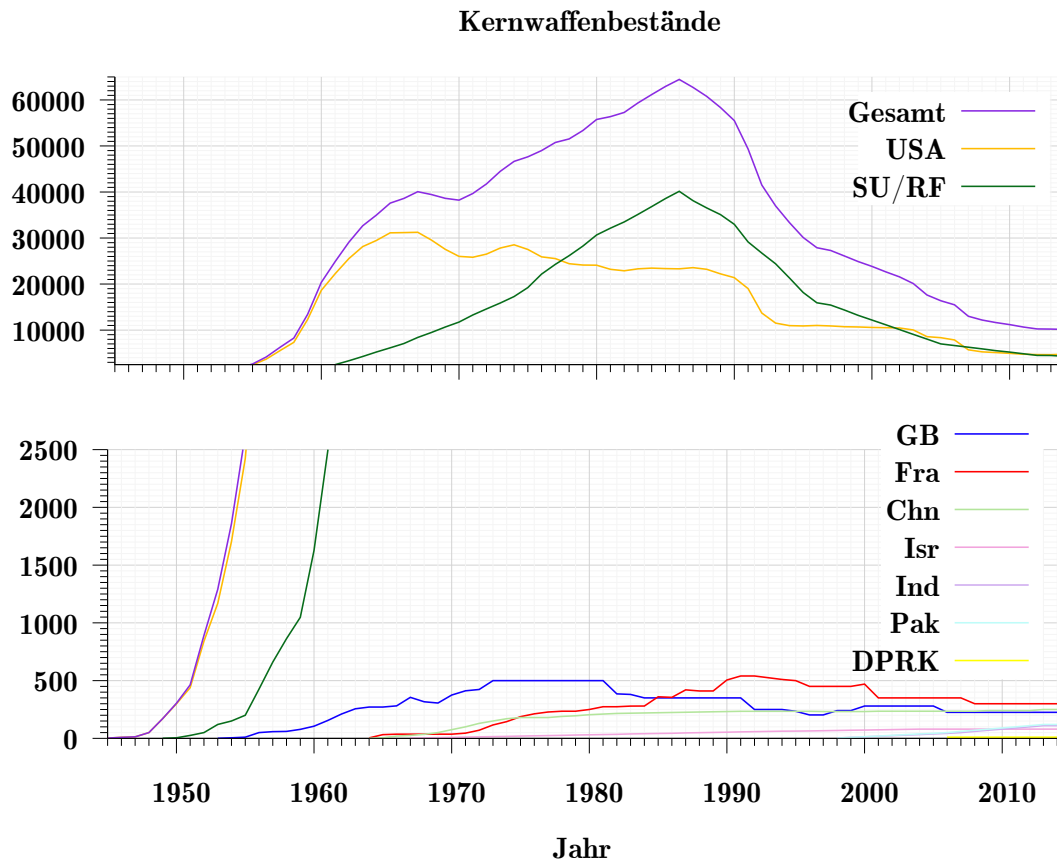


Abbildung 1.1 – Kernwaffenbestände der Kernwaffenstaaten USA, Sowjetunion/Russland, Großbritannien, Frankreich, China, Israel, Indien, Pakistan und Nordkorea von 1945 bis 2014. Zur Abrüstung vorgesehene Kernwaffen Grafik erstellt mit Daten von [8, 9, 10], bezogen über [11].

von 21 Kilotonnen hatte [12], war so groß, dass der Bomber-29 als einzige Flugzeugklasse der US-Amerikaner überhaupt in der Lage war, ihn zu transportieren und dazu noch umgebaut werden musste [13]. Moderne Sprengköpfe dagegen können eine weitaus größere Sprengkraft besitzen und so kompakt sein, dass sogar mehrere von ihnen auf eine Interkontinentalrakete (ICBM, *Intercontinental Ballistic Missile*) montiert werden können. Die Entwicklung geht so weit, dass diese Sprengköpfe mehrere unabhängige Ziele auslöschen können sollen (MIRV, *Multiple Independently targetable Reentry Vehicle*), wie zum Beispiel die *Peacekeeper* Rakete [14]. Trotz intensiver quantitativer Abrüstung existieren weltweit immer noch über 16 000 Kernwaffen, der Großteil davon nach wie vor in den USA und Russland [15].² Darüber hinaus wird bis heute qualitativ aufgerüstet, auch im Rahmen von Programmen zur Instandhaltung und Modernisierung. Durch die Erhöhung der Zielgenauigkeit und der Sprengkraft sind die modernen Kernwaffen um Größenordnungen effektiver als die ersten Kernwaffen und erlauben so auch eine quantitative Abrüstung (alter Kernwaffen), ohne dass das Bedrohungspotential des Kernwaffenarsenals verringert

²Wovon 5 500 zur Abrüstung vorgesehen sind.

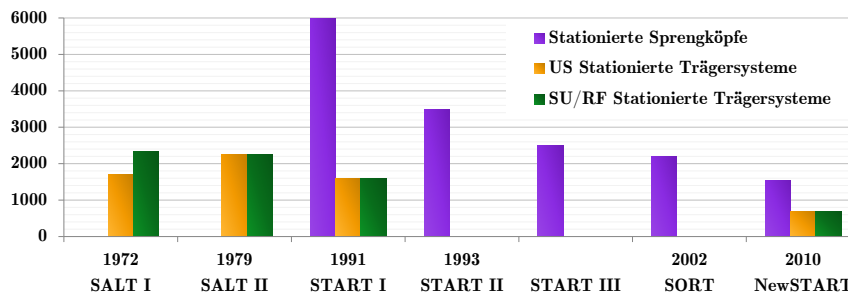


Abbildung 1.2 – Obergrenzen der stationierten strategischen Kernwaffen und ihrer stationierter Trägersysteme gemäß der bilateralen Rüstungskontrollverträge zwischen den Vereinigten Staaten von Amerika und der Sowjetunion, beziehungsweise der Russischen Föderation. Daten aus [16].

wird.

Abbildung 1.1 zeigt die Kernwaffenbestände von 1945 bis 2014 insgesamt, sowie die der Kernwaffenstaaten des Nichtverbreitungsvertrags: Vereinigte Staaten von Amerika (USA), der Sowjetunion/Russische Föderation (SU/RF), Großbritannien (GB), Frankreich (Fr) und China (Chn). Zur Abrüstung vorgesehene aber noch nicht abgerüstete Kernwaffen sind in der Grafik nicht berücksichtigt. Zählt man diese Kernwaffen mit, fällt die Anzahl der Kernwaffen nach 1986 deutlich flacher ab, vergleiche Abbildung 2 in [15]. Zu jedem Zeitpunkt ist der Großteil der Kernwaffen im Besitz der USA und der Sowjetunion, beziehungsweise ihrem Rechtsnachfolger der Russischen Föderation. Die anderen Staaten haben vergleichsweise geringe Arsenale deutlich unter 500 Kernwaffen. Nicht alle Staaten sind dem Nichtverbreitungsvertrag beigetreten und so gibt es neben den Kernwaffenstaaten des Nichtverbreitungsvertrages auch die sogenannten *de-facto* Kernwaffenstaaten Israel, Indien, Pakistan und Nordkorea, deren Arsenale noch niedriger sind.

Die *Arms Control Association* bietet einen guten Überblick über die bilateralen nuklearen Rüstungskontrollverträge zwischen den Vereinigten Staaten von Amerika und Russland, beziehungsweise der Sowjetunion, der auch online einsehbar ist [16]. Abbildung 1.2 zeigt einen Überblick über die bilateral zwischen den Vereinigten Staaten von Amerika und der Sowjetunion, beziehungsweise ab 1992 der Russischen Föderation, vereinbarten Obergrenzen der stationierten strategischen Kernwaffen und ihren stationierten Trägersystemen. Diese bilateralen nuklearen Rüstungskontrollverträge berücksichtigen keine eingelagerten oder zur Abrüstung vorgesehenen Kernwaffen, keine Ersatzteile, sowie keine taktischen Kernwaffen (für den Einsatz auf einem Gefechtsfeld) und die Art zu Zählen ist in den jeweiligen Verträgen definiert und nicht notwendigerweise objektiv. Da diese Rüstungskontrollverträge damit keine Aussage über die Anzahl der Kernwaffen insgesamt treffen, rüsten sie nicht notwendigerweise Kernwaffen ab und es gibt auch keine entsprechende Verifikation.

Vor diesem Hintergrund hatte die Rede des damaligen Präsidenten der Vereinigten Staaten von Amerika, Barack Obama am 5. April 2009 in Prag, in der dieser eine kernwaffenfreie Welt in Aussicht stellte, große Erwartungen bezüglich der atomaren Abrüstung geweckt [17]. Dies schlug sich in der *Nuclear Posture Review* des Verteidigungsministeriums der USA 2010 nieder:

The United States and Russia have deeply reduced their nuclear forces from Cold War levels, but both still retain many more nuclear weapons than needed. [18]

Auch in der Zivilgesellschaft gibt es viele Organisationen, die sich schon sehr lange und nachdrücklich für die atomare Abrüstung einsetzen. Unter anderem ist daraus 2012 die *Humanitäre Initiative* hervorgegangen, die sich vor allem mit den katastrophalen Folgen von Kernwaffen für die Menschen befasst. Die Überprüfungskonferenz des nuklearen Nichtverbreitungsvertrages 2015 in New York blieb ohne offizielles Ergebnis. Seitdem unterstützen 159 Staaten die *Humanitäre Initiative* und 114 Staaten schlossen sich Österreichs Aufruf (dem *Austrian Pledge*, später *Humanitarian Pledge*) vom Dezember 2014 an [19], der unter anderem fordert:

We call on all state parties to the NPT to renew their commitment to the urgent and full implementation of existing obligations under Article VI, and to this end, to identify and pursue effective measures to fill the legal gap for the prohibition and elimination of nuclear weapons and we pledge to cooperate with all stakeholders to achieve this goal, [20]

Dieser Aufruf wurde von der Generalversammlung der Vereinten Nationen als Resolution aufgenommen und von 127 Nationen formal empfohlen, darüber hinaus haben 23 weitere Staaten für die Resolution gestimmt [21].

Am 23. Dezember 2016 hat die Generalversammlung der Vereinten Nationen in ihrer 71. Sitzung die Resolution *A/RES/71/258, Taking forward multilateral nuclear disarmament negotiations* mit einer großen Mehrheit angenommen [22]. Die Resolution ist aus der Beschlussvorlage *A/C.1/71/L.41* des *First Committee* hervorgegangen, die am 14. Oktober 2016 verabschiedet wurde [23]. In den operativen Absätzen acht bis zehn der Resolution wird entschieden, dass 2017 in Form einer Konferenz in New York ein rechtlich bindendes Instrument zum Verbot von Nuklearwaffen mit dem Ziel der vollständigen Abrüstung verhandelt werden soll. Es wurden explizit alle Mitgliedsstaaten der Vereinten Nationen ermutigt an dieser Konferenz teilzunehmen. Diese Konferenz, an der keiner der Kernwaffenstaaten teilnahm, hat am 7. Juli 2017 mit 1 Gegenstimme, 1 Enthaltung und 122 Ja-Stimmen den „*Treaty on the prohibition of nuclear weapons*“, *A/CONF.229/2017/8* beschlossen [24]. Gemäß Artikel 13 liegt der Vertrag ab dem 20. September 2017 im Hauptquartier der Vereinten Nationen in New York für alle Staaten zur Unterzeichnung auf und tritt 90 Tage nach der fünfzigsten Ratifizierung in Kraft (Artikel 15) [25].

Damit wird ein zweites Instrument neben dem Nichtverbreitungsvertrag geschaffen, das den Besitz von Nuklearwaffen in jeder Form verbietet. Dies wird von vielen Staaten, insbesondere denen im Besitz von Kernwaffen und ihren Verbündeten³, abgelehnt, mit der Begründung, dass es den Nichtverbreitungsvertrag schwächen könnte. Man kann jedoch auch argumentieren, dass es den Nichtverbreitungsvertrag stärkt, insbesondere die dritte Säule, die Abrüstung, und dass ein entsprechendes Instrument, beziehungsweise Verhandlungen zu einem entsprechenden Vertrag in Artikel VI des Nichtverbreitungsvertrags angekündigt werden. Die Nichtregierungsorganisation *International Campaign to Abolish Nuclear Weapons* (ICAN) stellt auf

³Darunter befinden sich viele Staaten des Nordatlantikpakts (Englisch: *North Atlantic Treaty Organization*, NATO).

ihrer Webseite das Abstimmungsverhalten der Staaten und die schriftlichen Begründungen für die Ablehnung transparent dar [26].

Die größte Schwierigkeit bei der Entwicklung von Kernwaffen liegt in der Beschaffung waffengrädigen Spaltmaterials. Bei den natürlichen Uranressourcen beträgt der Anteil des relevanten Isotops Uran-235 nur 0.72%. Für den Bau einer Kernwaffe braucht man aber Uran mit einem deutlich höheren Uran-235 Anteil. Die Uran-235 Anreicherung erfordert umfangreiches Wissen und Ressourcen. Uran mit einem Uran-235 Anteil unter 20% wird als niedrig angereichertes Uran (*low enriched uranium*, LEU) bezeichnet, Uran mit höheren Uran-235 Anreicherungen als hoch angereichertes Uran (*high enriched uranium*, HEU) [27]. Bei Uran-235 Anreicherungen ab 90% spricht man von waffengrädigem Uran (WGU). Es ist auch möglich, aber weniger attraktiv mit niedrigeren Anreicherungen Kernwaffen zu bauen. Aus Uran-238 wird in Kernreaktoren Plutonium erbrütet, das ansonsten nur in kleinsten Spuren in sehr alten Gesteinen natürlich vorkommt. Man spricht ab einem Plutonium-239 Anteil von 93% von waffengrädigem Plutonium (WGPu), darunter von Reaktorplutonium. Plutonium-239 ist am besten für den Einsatz in Kernwaffen geeignet, die kritische Masse für eine unreflektierte Plutonium-239 Vollkugel beträgt nur 10 kg, im Vergleich zu 52 kg für eine unreflektierte Uran-235 Vollkugel [28]. Darüber hinaus gibt es noch weitere spaltbare Materialien, wie Americium, Neptunium, Uran-233 und Thorium, aus dem Uran gewonnen werden kann und die deshalb von der Internationalen Atomenergie-Organisation überwacht werden [27].

Es gibt seit vielen Jahren vielfältige Bestrebungen die Menge an waffengrädigem Spaltmaterial zu begrenzen. Als Erfolge gelten hier die beiden bilateralen Abkommen *Megatons to Megawatts*⁴ von 1993 und *Plutonium Management and Disposition Agreement*⁵ aus dem Jahr 2000 zwischen den Vereinigten Staaten von Amerika und der Russischen Föderation. Bei ersterem wurden über 475 Megatonnen hochangereichertes Uran in der Russischen Föderation zu niedrig angereichertem Uran verdünnt, an die Vereinigten Staaten von Amerika verkauft und dort in Kernkraftwerken verbrannt [29]. Im Rahmen des zweiten Abkommens sollten beide Staaten jeweils mindestens 34 Tonnen Plutonium in Kernbrennstoff umwandeln und verbrennen [30, 31], es wurde 2016 vorzeitig von der Russischen Föderation suspendiert [32]. Die Begrenzung des Zugangs zu waffengrädigem Spaltmaterial ist ein wichtiges Thema beim Konflikt zwischen der Islamischen Republik Iran und Staaten vor allem der westlichen Welt. Es gilt als großer Erfolg, dass der Iran sich dazu verpflichtet hat, Uran nur noch bis zu einem Uran-235 Anreicherungsgrad von bis 3.67%⁶ anzureichern [33]. Tatsächlich gibt es weltweit sehr viel hoch angereichertes Uran und Plutonium, sowohl in sehr großen Mengen, als auch in sehr vielen Ländern, sowohl in Kernwaffenstaaten, als auch in Nicht-Kernwaffenstaaten. Das *International Panel on Fissile Materials* (IPFM) berichtet darüber seit 2006, unter anderem in den *Global Fissile Material Reports* [15]. Ein Entwurf für einen Vertrag zur Begrenzung von

⁴*Agreement between the Government of the Russian Federation and the Government of the United States of America Concerning the Disposition of Highly-Enriched Uranium Extracted from Nuclear Weapons*

⁵*Agreement between the Government of the United States of America and the Government of the Russian Federation Concerning the Management and Disposition of Plutonium Designated as No Longer Required for Defense Purposes and Related Cooperation*

⁶In dieser Arbeit wird konsistent der Dezimalpunkt '.' als Dezimaltrennzeichen verwendet.

(zumindest der Produktion von neuem) Spaltmaterial liegt in Form des *Fissile Material Cut-off Treaty* (FMCT) bereits seit 1994 der Genfer Abrüstungskonferenz der Vereinten Nationen (Englisch: *United Nations Conference of Disarmament*, UNCD) vor, die sich aber erst 2009 darauf einigen konnte, darüber verhandeln zu wollen [34].⁷ Es gibt allerdings weiterhin keinen Konsens darüber, auf welcher Basis Verhandlungen geführt werden sollen. Stattdessen wurde 2015/2016 eine Gruppe staatlicher Experten einberufen, die aber explizit keinen Vertrag verhandeln soll, sondern nur Empfehlungen abgeben [36], auch 2017/2018 wird es wieder eine solche Experten-Gruppe geben [37]. Die Verhandlungen wurden noch nicht aufgenommen, obwohl seit 2009 ein Vertragsentwurf der Republik Frankreich vorliegt [38], wie auch der Jahresabrüstungsbericht 2015 der Deutschen Bundesregierung bedauernd feststellt:

Schließlich sollten möglichst bald Verhandlungen für einen Vertrag aufgenommen werden, der die Produktion von waffenfähigem Nuklearmaterial für militärische Zwecke (FMCT) verbieten würde. Angesichts des Stillstands in der Genfer Abrüstungskonferenz und der bereits geleisteten konzeptionellen Vorarbeiten dürfen auch Verhandlungen in anderen Gremien kein Tabu sein. [39]

1.3 Verifikation nuklearer Abrüstung

Die bisherigen bilateralen Rüstungskontrollverträge zwischen den Vereinigten Staaten von Amerika und der Sowjetunion, beziehungsweise der Russischen Föderation beschränkten sich auf die stationierten strategischen Kernwaffen, beziehungsweise deren Trägersysteme. Es gab bisher zu keinem Zeitpunkt eine vertragliche Verpflichtung Kernwaffen nachprüfbar und irreversibel abzurüsten. Die Verifikation beschränkte sich bisher auf die Trägersysteme zur Ausbringung und die darauf montierten Kernwaffen, wobei diese jeweils nur gezählt wurden. Die bisherige Abrüstung von Kernwaffen war rein freiwillig und selbstbestimmt und wurde nicht von unabhängigen Inspektoren verifiziert, ungeachtet Artikels VI des Nichtverbreitungsvertrag.

Je näher sich die Zahl der stationierten Kernwaffen der Vereinigten Staaten von Amerika und Russlands der der anderen Kernwaffenstaaten annähert, desto größer wird der Bedarf, diese in Rüstungskontrollverträge miteinzubeziehen. Russische Diplomaten meldeten diesbezüglich 2013 schon Bedarf für potentielle Verhandlungen zu einem Nachfolger des New START (New Strategic Arms Reduction Treaty) Vertrages an [40]. Darüber hinaus könnte bei einer niedrigen Anzahl stationierter Waffen der wahrgenommene eigene Vorteil bei einer Übervorteilung der anderen Parteien größer erscheinen. Entsprechend notwendiger wird die Einbeziehung von wirksamer und damit intrusiver Verifikation in zukünftige Verträge zur Abrüstung von Kernwaffen.

Um die Abrüstung einer Kernwaffe zu verifizieren muss erstens sichergestellt werden, dass es sich bei einem abzurüstenden Objekt tatsächlich um eine Kernwaffe handelt (Authentifizierung) und zweitens, dass diese auch irreversibel abgerüstet

⁷Es gibt bereits seit 1995 das sogenannte Shannon Mandate, einen vielfach referenzierten Report des Kanadischen Botschafters G. E. Shannon [35].

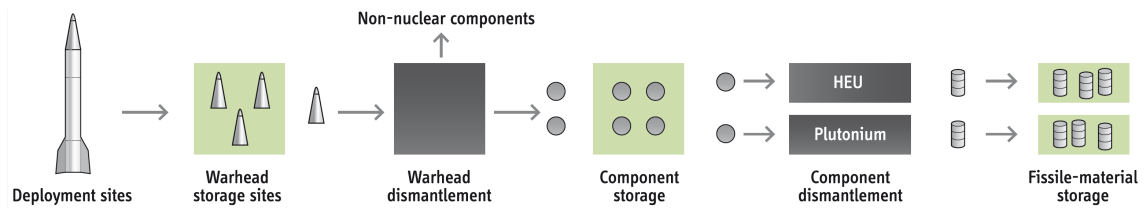


Abbildung 1.3 – Abrüstung eines nuklearen Gefechtskopfes: Zunächst werden die Gefechtsköpfe von dem Trägersystem, zum Beispiel einer Rakete getrennt. Die Gefechtsköpfe werden in ihre Einzelteile zerlegt, wobei die nuklearen Komponenten von den nicht-nuklearen, insbesondere dem Sprengstoff getrennt werden. Das waffenfähige Spaltmaterial wird konvertiert und dann gelagert. Aus dem *Global Fissile Material Report 2009* [28].

wird. Dies birgt eine ganze Reihe von besonderen Herausforderungen, auf die im Folgenden näher eingegangen wird.

Beim Großteil der einsatzbereiten Kernwaffen handelt es sich um Gefechtsköpfe, die auf Raketen montiert sind. Abbildung 1.3 aus dem *Global Fissile Material Report 2009* zeigt einen möglichen Abrüstungspfad eines solchen Gefechtskopfes von dessen Stationierung bis zur Lagerung des Spaltmaterials, also des Plutoniums und Urans. Wird das Objekt schon auf der stationierten Rakete identifiziert, so erhöht dies die Wahrscheinlichkeit, dass es sich tatsächlich um einen Gefechtskopf handelt. Dies gilt umso mehr, wenn das Objekt schon deutlich vor der eigentlichen Abrüstung eindeutig identifiziert wurde, zum Beispiel über seine Seriennummer und darüber hinaus Einsicht in die entsprechende Dokumentation und Buchhaltung genommen werden kann. Für mehr Informationen zu solchen Deklarationen und Registrierungen (Englisch: *declarations and register*) siehe zum Beispiel [41].

Außerdem ist es nötig sicherzustellen, dass das Objekt zu keinem Zeitpunkt gegen eine Attrappe ausgetauscht wird, wozu eine einfache Seriennummer in der Regel nicht ausreicht. Es kann aber durch eindeutige Siegel und Markierungen gewährleistet werden (Englisch: *seals and tags*) [42]. Darüber hinaus muss verhindert werden, dass Spaltmaterial abgezweigt wird, da dieses für die Konstruktion von neuen Kernwaffen genutzt werden könnte. Dies könnte über längere Zeiträume sichergestellt werden, indem der Gefechtskopf, beziehungsweise nach dessen Demontierung seine Bestandteile in versiegelten Containern gelagert und/oder durch Kameras beobachtet werden könnten (Englisch: *containment and surveillance*) [43]. Der letzte Schritt ist die Lagerung und Entsorgung des Spaltmaterials um zu verhindern, dass daraus neue Kernwaffen gebaut werden können (Englisch: *storage and disposal*) [44].

Dies alles sind Kernelemente des Abrüstungsverifikationsprozesses deklarerter Kernwaffen. Darüber hinaus muss verhindert werden, dass Kernwaffen gar nicht erst deklariert werden und damit jedweder Kontrolle durch Rüstungskontrollverträge entgehen. Letzteres kann auf zwei Wegen erreicht werden. Zum einen können existierende Kernwaffen in geheime Lagerstätten verbracht und nicht deklariert werden. Dann müssen alle entsprechenden Unterlagen, auch potentiell sehr alte, gefälscht, vernichtet oder für Kontrolleure unzugänglich verwahrt werden. Zweitens könnten neue Kernwaffen produziert werden, wobei die Anlagen dann wiederum nicht deklariert sein dürften, also klandestin. Die Einbeziehung auch nicht deklarerter Sprengköpfe

und Materialien, beziehungsweise deren Produktion in den Verifikationsprozess ist ein wichtiger Teil der sogenannten *Completeness*. Viele dieser Verifikationstechniken werden schon seit einiger Zeit routinemäßig angewendet, zum Beispiel bei der Verifikation des Nichtverbreitungsvertrages. Dazu zählt beispielsweise die Fernüberwachung mit Satelliten (Englisch: *satellite imagery*, siehe zum Beispiel [45]) und die Untersuchung von Umweltproben (Englisch: *environmental sampling*) [46], um undeklarierte Anlagen zu entdecken und die nukleare Archäologie (Englisch: *nuclear archaeology*) [47] um die Herkunft nuklearen Materials zu bestimmen. Ein Abrüstungsvertrag mit wirksamer Verifikation muss alle genannten Möglichkeiten adressieren und mit angemessener Wahrscheinlichkeit die Entdeckungswahrscheinlichkeit von Verstößen sicherstellen.

Diese Arbeit konzentriert sich auf den Aspekt der Authentifizierung von Kernwaffen, beziehungsweise deren nuklearen Komponenten vor und/oder nach der Demontierung, dem zentralen Element der Abrüstungsverifikation [48]. Im Folgenden wird zunächst das grundlegende Funktionsprinzip von Kernwaffen erläutert bevor näher auf die Authentifizierung eingegangen wird.

1.4 Kernwaffenauthentifizierung mit Informationsbarrieren

Um eine Kernwaffe zu authentifizieren muss sie eindeutig als eine solche identifiziert werden. Es gibt eine Reihe von Charakteristika, die allen Kernwaffen gemein sind und deshalb die grundlegendsten Attribute von Kernwaffen darstellen. Dazu gehören unbezweifelbar die Anwesenheit von Spaltmaterial, dessen Waffengrädigkeit und Mindestmasse; sie sind die wichtigsten Attribute. Darüber hinaus sind weitere Attribute naheliegend, wie zum Beispiel die Geometrie des Spaltmaterials; die Abwesenheit von Oxid im Spaltmaterial, da dieses sonst Neutronen absorbieren würde, die dann nicht mehr zum Induzieren von Spaltungen zur Verfügung stünden; die Anwesenheit von Sprengstoff; gegebenenfalls das Alter des Spaltmaterials, das mit vorhandenen entsprechenden Deklarationen verglichen werden kann; und einige mehr [49]. Viele technischen Maßnahmen zur Steigerung der Effizienz von Kernwaffen können die Messung dieser Attribute beeinflussen. So kann die Sprengkraft einer Kernwaffe zum Beispiel durch eine geeignete Geometrie des Spaltmaterials erhöht werden; durch die Anwesenheit einer zusätzlichen Neutronenquellen und/oder Neutronenreflektoren, wodurch die Neutronenflussdichte erhöht wird; oder durch umgebende sehr dichte Materialien, die das *Wieder-auseinander-fliegen* des Spaltmaterials während der Explosion verzögern.

Durch die Forderung nach unabhängiger Kontrolle der Abrüstung von Kernwaffen ergibt sich ein Spannungsfeld zwischen der dadurch notwendigen Transparenz einerseits und der in der Natur der Atomwaffen liegenden Geheimhaltungsstrategie andererseits. Letztere ist bedingt durch den militärischen Vorteil, die sich Kernwaffenstaaten vor ihren Konkurrenten versprechen, aber auch durch das Kernanliegen des Nichtverbreitungsvertrages, die Nichtverbreitung.

Eine elegante Lösung, die die Forderungen nach Transparenz und Geheimhaltung gleichzeitig erfüllen kann, stellen Informationsbarrieren dar. Sie ermöglichen eine

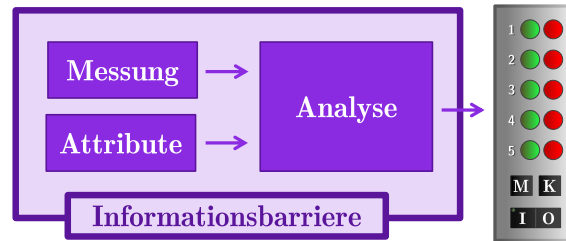


Abbildung 1.4 – Schema einer Informationsbarriere die entscheidet, welche Informationen einer Messung und Analyse (links) an eine Anzeige (rechts) weitergegeben werden. Angelehnt an eine Grafik von Holdren *et al.* [50].

genaue Kenntnis einer Sache auf der einen Seite, während auf der anderen Seite (der Informationsbarriere) nur nicht-sensitive Informationen angezeigt werden. Dies kann beispielsweise durch ein Computersystem realisiert werden, das auf umfassende und detaillierte Informationen zugreift, als Ergebnis aber nur wenige, genau definierte Aussagen über den untersuchten Gegenstand ausgibt. Diese Aussagen können zum Beispiel bestimmte Attribute wie die Anwesenheit von Spaltmaterial, dessen Masse und Isotopenzusammensetzung betreffen.

Damit die Analyse hinter der Informationsbarriere stattfinden kann, muss die Notwendigkeit menschlicher Interaktion ausgeschlossen werden können, da andernfalls die Informationsbarriere *ad absurdum* geführt würde. Die Messmethoden müssen also vollautomatisch verlässliche Ergebnisse liefern. Da dies zur Zeit selbst die etablierten nuklearen, insbesondere gamma-spektroskopischen Messsysteme nicht leisten, ist hier der Forschungsbedarf groß, diese zu verbessern und nach robusteren Alternativen zu suchen. Neutroneninduzierte Gammastrahlung hat das Potential eine Ergänzung oder vielleicht sogar eine Alternative zu passiven Gammamessungen darzustellen.

In Abbildung 1.4 ist das Schema einer Attribut-Informationsbarriere dargestellt: Ein Computersystem analysiert ein detailliertes physikalisches Messergebnis, zum Beispiel ein Gammaspektrum, um festzustellen, ob im Vorhinein festgelegte Attribute erfüllt werden, zum Beispiel das Vorhandensein von spaltbarem Material. Das Computersystem gibt das Ergebnis nur in Form eines ja/nein oder grün/rot Signals weiter an eine Ausgabe außerhalb der Informationsbarriere. Die Barriere an sich ist nicht notwendigerweise physisch, sondern ein Algorithmus, der entscheidet, welche Informationen der Messung und Analyse an die Anzeige weitergegeben werden. Sie kann aber mit einer physischen Trennung einhergehen, unter anderem indem verschiedene Prozessoren für die sensitiven und nicht-sensitiven Rechenoperationen verwendet werden [51, 52]. Die detaillierte Messung mitsamt aller sensiblen Messdaten, sowie die ausführliche Analyse werden nicht dauerhaft gespeichert und verbleiben immer hinter der Informationsbarriere verborgen. Der Nutzer, zum Beispiel ein Inspektor hat niemals Zugriff darauf. Die Interaktionsmöglichkeiten des Nutzers mit der Informationsbarriere sind sehr beschränkt, zum Beispiel auf das Ein- und Ausschalten, das Starten der Kalibrierung und der Messung und das Auslesen des ja/nein, beziehungsweise rot/grün Signals bezüglich der Attribute als Ergebnis der Messung. Eine weitergehende, detailliertere Beschreibung findet sich zum Beispiel bei Langner *et al.* [53].



Abbildung 1.5 – Komponenten einer Thermonuklearen Kernwaffe (Wasserstoffbombe) des Typs B-83 der Vereinigten Staaten von Amerika. Die B83 hat eine Sprengkraft von bis zu 1.2 Megatonnen TNT (das 75-fache der Kernwaffe *Little Boy*, die am 6. August 1945 auf Hiroshima abgeworfen wurde) [54]. Grafik aus [55].

Man unterscheidet für Informationsbarrieren zwei Ansätze, einmal mit den erwähnten Attributen und einmal mit einer Referenzmessung (*Template*). Beim *Template* Verfahren vergleicht ein Algorithmus hinter einer Datenbarriere die Messung mit einer bereits vorher durchgeführten und gespeicherten Referenzmessung und gibt dem Inspektor ein Signal, das die Übereinstimmung beider Messungen bejaht oder verneint. (Ersetze die *Attribute* in Abbildung 1.4 durch ein *Template*.) Dass mindestens diese eine Referenzmessung über längere Zeiträume gespeichert werden muss, stellt den größten Schwachpunkt dieser Methode dar, da die im Referenzspektrum enthaltenen Informationen sehr sensitiv sind. Darüber hinaus muss sicher gestellt werden, dass es sich bei der Referenzmessung selbst mit ausreichender Wahrscheinlichkeit um die Messung eines nuklearen Sprengkopfes handelt, sowie dass sie nicht zu einem späteren Zeitpunkt manipuliert wurde. Dieses Problem spielt beim Attributansatz eine geringere Rolle, da die Attribute selbst nicht sensitiv sind und es entsprechend schwerer ist, den Algorithmus zu manipulieren, ohne dass dies auffällt. Gleichzeitig ist es leichter, den (unmanipulierten) Algorithmus zu täuschen und eine Attrappe zu bauen, die alle Attribute erfüllt.

Bei einer Attribut-Informationsbarriere werden keine sensitiven Daten dauerhaft gespeichert, sondern nur der Algorithmus der Informationsbarriere und die Attribute. Die Attribute selbst sind nicht geheim. Sie werden in Verhandlungen festgelegt, gemeinsam von dem Besitzer der Kernwaffe (dem Kernwaffenstaat, KWS, im Englischen auch *Host*) und dem überprüfenden Inspektor, dies kann ein Kernwaffenstaat oder ein Nichtkernwaffenstaat (NKWS) sein. Die Attribute sind Eigenschaften, die

die abzurüstende Kernwaffe möglichst eindeutig definieren, ohne dabei zu viel sensitive Informationen preiszugeben. Es ist eine Vielzahl an Attributen möglich und dass sich die Attribute je nach Kernwaffentyp unterscheiden. Abbildung 1.5 ist eines der wenigen öffentlich zugänglichen Fotos, die die Komponenten einer Kernwaffe zeigen. Es handelt sich dabei um eine thermonukleare Waffe, bei der der Großteil der Energie nicht bei der initialen Spaltphase entsteht, sondern bei der dadurch ausgelösten Fusion von Lithiumdeuterid und Tritium. Die dabei frei werdende sehr große Anzahl von Neutronen wird wiederum benutzt, um hoch-angereichertes Uran im Fusionsteil der Bombe zu spalten [28]. Um die Fusion zu starten ist sehr viel Energie notwendig, die durch die Spaltung von Plutonium gewonnen wird. Die meisten modernen Kernwaffen sind Fusionsbomben, die aber immer einen Spaltteil beinhalten, um die Fusion zu zünden. Der Fokus dieser Arbeit liegt auf dem Spaltteil, da dieser allen Kernwaffen gemein ist.

1.5 Geschichte der Kernwaffenauthentifizierung

Das Forschungsgebiet Kernwaffenauthentifizierung gibt es schon seit den 1960er Jahren [56]. Die meisten Forschungsaktivitäten finden in den Kernwaffenstaaten statt, die ihre Ergebnisse nur teilweise publizieren. Eines der bekanntesten entsprechenden Forschungsprojekte ist die *Trilateral Initiative*. Sie wurde 1996 von den USA und Russland ins Leben gerufen und bezieht die Internationale Atomenergie Organisation (IAEO, auf Englisch *International Atomic Energy Agency* oder IAEA) mit ein, also einen Akteur außerhalb der Kernwaffenstaaten des Nichtverbreitungsvertrages. Die *Trilateral Initiative* hatte das Ziel zu untersuchen, inwieweit die IAEO zur Abrüstung von Kernwaffen und Spaltmaterial aus den USA und Russland beitragen kann. Neben den physikalisch-technischen Herausforderungen beschäftigte sich die *Trilateral Initiative* auch mit den rechtlichen und finanziellen Dimensionen. Ein Ergebnis der *Trilateral Initiative* ist, dass direkte quantitative physikalische Messungen Waffengeheimnisse aufdecken könnten und daher nicht in Frage kommen, weshalb man sich innerhalb der Initiative darauf einigte, an Attribut-Informationsbarrieren zu forschen [53, 57]. Es gibt nur wenige und vor allem wenig detaillierte wissenschaftliche Publikationen. Die meisten relevanten Forschungsarbeiten wurden von Kernwaffenforschungseinrichtungen durchgeführt und nicht veröffentlicht. Insbesondere zu (n,gamma)-Messungen gibt es in diesem Bereich keine publizierten Vorarbeiten.

Im Rahmen der *Fissile Material Transparency Technology Demonstration* der USA wurde in den 1990er Jahren eine Informationsbarriere für Plutonium entwickelt und gebaut [58]. Sie überprüft sechs Attribute: die Anwesenheit von Plutonium, die Waffengrädigkeit, die Masse, das Alter, die Abwesenheit von Plutoniumdioxid⁸ und die Symmetrie des Plutoniums. Als Messsystem wird die passive Gammaskpektrometrie genutzt und dafür drei Energieregionen definiert: *Pu300* (320 bis 400 keV), *Pu600* (630 bis 670 keV) und *Pu900* (870.7 keV) [58]. Die Anwesenheit von Plutonium-239 kann über dessen Gammalinien in den *Pu300* und *Pu600* Regionen überprüft werden. Da auch das Isotop Plutonium-240 Emissionslinien in

⁸Da Plutonium und Uran in Kernwaffen in der Regel in metallischer Form verwendet werden, ist die Anwesenheit von Plutoniumdioxid und Urandioxid ein Hinweis darauf, dass das untersuchte Spaltmaterial nicht aus einer Kernwaffe stammt.

der *Pu600* Region hat, kann über das Verhältnis der Intensität der Plutonium-239 und Plutonium-240 Emissionen der Isotopenvektor zwischen den Beiden und damit die Waffengrädigkeit des Plutoniums bestimmt werden. Die Masse des Plutoniums wird mithilfe eines anderen Detektorsystems, eines Neutronenmultiplizitätszählers gemessen. Das Alter von Plutonium kann durch das Mengenverhältnis des Isotops Plutonium-241 mit seinen Zerfallsprodukten Uran-237 und vor allem Americium-241 bestimmt werden, deren stärkste Gammalinien im *Pu300* Bereich liegen [59]. Die Abwesenheit von Plutoniumdioxid wird über das Sauerstoffisotop O-17 in der *Pu900* Region nachgewiesen. Andere Ansätze greifen auf neutroneninduzierte Gammaskopie zurück, um die Abwesenheit von Plutoniumdioxid zu verifizieren [49]. Insbesondere im Fall der Isotopenzusammensetzung ist zu beachten, dass die Absorptionsrate energieabhängig ist [60], weshalb das Isotopenverhältnis mithilfe der Gammalinien bei 646.0 keV und 642.5 keV bestimmt wird, um Energieabhängigkeitseffekte zu minimieren. Für Uran liegen die stärksten Gammalinien der beiden entscheidenden Isotope mit 185.7 keV für Uran-235 und 1001.0 keV für Uran-238 deutlich weiter auseinander, wobei Letzteres über das Tochterisotop Protactinium-234m nachgewiesen wird.

Beide, die *Trilateral Initiative* und die *Fissile Material Transparency Technology Demonstration* beschäftigten sich vor allem mit grundlegenden Konzepten und nicht mit der Sicherheit der Soft- und Hardware Authentifizierung. Dabei wird überprüft, ob die jeweiligen Komponenten tatsächlich genau so arbeiten wie beabsichtigt. Das ist wichtig um sicher zu stellen, dass die jeweiligen Komponenten nicht manipuliert werden. Manipulationen sind in beide Richtungen denkbar: Der Besitzer der Kernwaffe könnte Soft- und Hardware-Komponenten so manipulieren, dass auch eine Attrappe als Kernwaffe angezeigt wird; die Inspektoren könnten die Komponenten so manipulieren, dass sie Zugang zu sensitiven Informationen bekommen, die eigentlich geschützt werden sollten. Die Forschung konzentrierte sich auf die Kernwaffen der US-amerikanischen und russischen Arsenale, können aber prinzipiell auf die Kernwaffendesigns anderer Staaten übertragen werden, da die Attribute sehr generell gefasst sind. Alle Kernwaffenstaaten haben naturgemäß ein großes Eigeninteresse, das die Objektivität der Forschung in Frage stellt. Sie könnten es als Vorteil empfinden, einen Informationsvorsprung zu behalten, sowohl vor konkurrierenden Kernwaffenstaaten, als auch vor potentiellen Abrüstungsinspektoren aus Nichtkernwaffenstaaten. Ihre Aktivitäten sind somit oft vorrangig auf Geheimhaltung ausgerichtet, sowie darauf, auf alle Eventualitäten vorbereitet zu sein. Ein möglichst objektives, konstruktives oder transparentes Verhalten muss dahinter im Zweifelsfall zurückstehen. Dies kann nicht oder kaum überprüft werden, da die entsprechenden Forschungseinrichtungen und -arbeiten sehr strengen Auflagen zur Geheimhaltung unterliegen. Daraus ergibt sich für die Nichtkernwaffenstaaten hier eindeutig die Verantwortung selbst unabhängige und transparente Forschung zu betreiben. Die Frage woran genau geforscht und was publiziert werden darf bleibt ein limitierender Faktor, da Wissenschaftler aus den Nichtkernwaffenstaaten des Nichtverbreitungsvertrages an dessen Obligationen gebunden sind, wobei dann Artikel II besonders relevant ist. Bisher gibt es in Nichtkernwaffenstaaten nur wenig Forschung zur Kernwaffenauthentifizierung, da die Forschung zur Abrüstung von Kernwaffen augenscheinlich vorrangig als die Aufgabe der Kernwaffenstaaten betrachtet wird.

Die *UK/Norway Initiative* ist eine Kooperation des Vereinigten Königreichs Großbritannien und Nordirland mit dem Königreich Norwegen und bezieht damit als erste entsprechende Initiative explizit einen Nichtkernwaffenstaat mit ein [56, 61, 62]. Darüber hinaus fokussiert sich die Initiative bewusst nicht auf bestimmte Waffentypen, sondern untersucht die Verifikation von Kernwaffen im Allgemeinen. Die *UK/Norway Initiative* konzentriert sich auf den Bau von Informationsbarrieren mit etablierten Messtechniken, insbesondere auf passive Gammaskopie. Dazu wurden zunächst zwei voneinander unabhängige Informationsbarrieren entwickelt, je eine in jedem Königreich. Aufbauend auf so gewonnenen Expertise wurden dann eine gemeinsame Informationsbarriere gebaut und alle Spezifika publiziert [63].

Die *Nuclear Threat Initiative (NTI)* aus den Vereinigten Staaten von Amerika ist maßgeblich an zwei weiteren Initiativen beteiligt: Das *Pilot Verification Project* fokussiert sich auf Deklarationen, die globale Kapazität für Verifikation und gesellschaftlichen Verifikation [64, 65]. Die *International Partnership for Nuclear Disarmament Verification (IPNDV)* trifft sich zur Zeit regelmäßig in drei internationalen Arbeitsgruppen zu den Themen „Überwachungs- und Verifikationsverfahren“, „Vor Ort Inspektionen“ und „Technische Herausforderungen und Lösungen“ [66, 67].

1.6 Aktive Messungen zur Kernwaffenauthentifizierung

Aktive Messungen können eine sinnvolle Ergänzung oder sogar Alternative zu den etablierten passiven Messmethoden darstellen. Die Nukleare Resonanz-Fluoreszenz (NRF) nutzt Gammastrahlung um das Spaltmaterial zu aktivieren und dann die induzierten Gammaemissionen zu messen [68]. Ein Nachteil der etablierten Messtechniken ist, dass geeignete Maßnahmen getroffen werden müssen, um die Proliferation der gemessenen sensitiven Informationen zu schützen. Informationsbarrieren sind dafür ein geeignetes Werkzeug, der Schutz der sensitiven Informationen ist dann aber von der Sicherheit der Informationsbarriere gegen Manipulationen abhängig. Dies gilt umso mehr für *Template* Informationsbarrieren, da dabei die *Templates* dauerhaft gespeichert werden müssen. Um diese Problematik zu vermeiden, gibt es vielversprechende Ansätze, von vornherein erst gar keine sensitiven Daten zu messen. In Princeton wurde erstmals das *Zero Knowledge Protocol* auf diese Problematik angewendet [69, 70, 71]. Es handelt sich dabei um *Template* Verfahren, bei denen keine sensitiven Informationen im *Template* enthalten sind, ohne dass dieses dabei seine Eineindeutigkeit verliert, analog zum Hash-Wert in der Kryptographie. Darüber hinaus untersucht die Gruppe in Princeton andere mögliche Messtechniken wie Gammaskopie [72] und entwickelt eine eigene Informationsbarriere [73].

Der *Physical Cryptography* Ansatz des *Massachusetts Institute of Technology* (MIT) kombiniert Kryptographie mit der Nuklearen Resonanz-Fluoreszenz: ein Elektronen Strahl wird genutzt, um Bremsstrahlung zu erzeugen, mit der der zu untersuchende Gegenstand bestrahlt wird. Die den Gegenstand passierende Strahlung wird dann an einer verschlüsselnden Folie (*encrypting foil*) gestreut und dieses Signal gemessen [74]. Die Folie dient als Schlüssel, der verhindert, dass sensitive Informationen gemessen werden. Die betrachteten Gammas haben Energien bis über 2.5 MeV und

sind damit relativ unempfindlich gegen Abschirmung. Das *Zero Knowledge Protocol* aus Princeton beruht auf Neutronen-Radiographie und -Tomographie mit 14 MeV Neutronen, die noch unempfindlicher gegenüber Abschirmung sind [69, 70, 71]. Auch das *Coded-Aperture Imaging* Konzept der *National Laboratories* in *Oak Ridge, Livermore* und *Idaho Falls* verwendet aus diesem Grund schnelle Neutronen [75].

Mit Neutronenmultiplizitätsmessungen kann die Masse von Spaltmaterial bestimmt werden, wobei in gewissen Grenzen Effekte durch eine unbekannt Geometrie des Spaltmaterials korrigiert werden können [76]. Voraussetzung dafür ist aber die Kenntnis der Isotopenzusammensetzung, die weiterhin mit anderen Messmethoden ermittelt werden muss. Die Kombination aus Gammaspektroskopie und Neutronenmultiplizitätsmessungen ermöglicht es, sowohl die Anwesenheit von Spaltmaterial, als auch dessen Masse und Isotopenzusammensetzung zu verifizieren.

1.7 Forschungsfrage

In der vorliegenden Arbeit wird das Potential von neutroneninduzierter hoch-energetischer Gammastrahlung zur Charakterisierung von Uran-235, Uran-238, Plutonium-239 und Plutonium-240 untersucht. Der Fokus liegt dabei auf dem Energiebereich von 3 bis 6.5 MeV. Es werden insbesondere auch tragbare Neutronenquellen berücksichtigt, um den Anforderungen einer Anwendung in der Abrüstungsverifikation genüge zu tun. Sollte es mit dieser Messmethode in einem relativ kompakten Aufbau möglich sein, Spaltmaterial hinter Abschirmung nicht nur zu identifizieren, sondern zu charakterisieren, bietet sich darüber hinaus eine Anwendung in der nuklearen Gefahrenabwehr an, einem Teilgebiet der CBRN Gefahrenabwehr.⁹ So könnte beispielsweise an Kontrollpunkten, nicht nur der Schmuggel von nuklearem Material aufgedeckt, sondern dieses auch vor Ort charakterisiert und das Gefahrenpotential eingeschätzt werden.

In diesem Kapitel *Verifizierte Abrüstung von Kernwaffen* werden einleitend die Geschichte und der Stand der nuklearen Abrüstung, der Abrüstungsverifikation, die Forschungsfrage und der Stand der Forschung zu Neutronen-induzierten prompten Gamma-Signaturen in Plutonium-239 und Plutonium-240, sowie in Uran-235 und Uran-238 zusammengefasst. Dies dient gleichzeitig der Kontextualisierung und Motivation dieser Forschungsarbeit. In Kapitel 2 werden die wichtigsten *Physikalischen Grundlagen* erläutert, die zum Verständnis der folgenden Kapitel notwendig sind. In Kapitel 3 werden die Vorgehensweise, die Methodik und die Ergebnisse der *analytischen Abschätzungen* beschrieben. Diese Abschätzungen dienen der Vorbereitung von *experimentellen Messungen*, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden. Die entsprechenden Versuchsanordnungen werden in Kapitel 4 beschrieben, die Ergebnisse analysiert und in den Kontext der analytischen Abschätzungen gestellt. In Kapitel 5 werden ein *Fazit und Ausblick* für die hier vorgestellten Forschungsarbeiten gezogen und gegeben. Im Anhang ab Seite 139 finden sich ergänzende Dokumente, Abbildungen und Tabellen, die den Rahmen des Fließtextes überschritten hätten und deshalb nur im Anhang wiedergegeben werden, wie zum Beispiel die vollständigen Quellcodes, mit denen die analytischen Abschätzungen durchgeführt wurden.

⁹Chemische, Biologische, Radiologische und Nukleare Gefahrenabwehr

1.8 Stand der Forschung zu Neutronen-induzierten prompten Gamma-Signaturen in Plutonium-239 und Plutonium-240, sowie in Uran-235 und Uran-238

Bisher ist wenig dazu geforscht worden, Uran und Plutonium systematisch im hohen Energiebereich auszumessen. In diesem sind bei neutroneninduzierten Messungen weitaus mehr Gammaemissionen zu erwarten, da durch den Neutroneneinfang zusätzlich zur kinetischen auch die Bindungsenergie des Neutrons frei wird. Auch in der Hochzeit der Entwicklung von *Fast Neutron Detectors and Applications* (FNDA) und *Proximal Femoral Nail Antirotation*TM (PFNA), also Verfahren zur neutroneninduzierten Gammaskopie in den 1990er Jahren wurde nicht viel zur Identifizierung von nuklearen Materialien geforscht, stattdessen konzentrierte man sich auf Elemente mit niedriger Kernladungszahl, die auch Hauptbestandteile von chemischen Sprengstoffen sind.¹⁰ In der Studie *NMIS With Gamma Spectrometry For Attributes of Pu and HEU, Explosives and Chemical Agents* (NMIS steht für *Nuclear Materials Identification System*) aus dem Jahre 2002 wird ein umfassendes Verfahren vorgestellt, bei dem auf aktive Gammaskopie zurückgegriffen wird, um chemische Sprengstoffe zu identifizieren [49, 77]. Auch in anderen Studien wird neutroneninduzierte Gammaskopie verwendet, um chemische Kampfstoffe und Sprengstoffe in potentiellen oder deklarierten Chemiewaffen zu identifizieren [78, 79, 80]. Für die Charakterisierung der Spaltmaterialien werden dagegen passive Gammamessungen durchgeführt.

In den letzten Jahren wurden in den Vereinigten Staaten von Amerika aktive Gammamessungen an Spaltmaterial wieder mit in den Fokus genommen. Die drei Forscher Robert Runkle, David Chichester und Scott Thompson haben 2011 einen einführenden Überblick aktiver Messungen an Spaltmaterial publiziert und konstatiert, dass Neutroneneinfangsreaktionen in Spaltmaterial sich bei dem Vorhandensein von Abschirmung als nützlich erweisen könnten, aber noch nicht ausreichend untersucht worden sind [81]. Andere Verfahren, die deutlich besser erforscht sind stehen nur in indirektem Zusammenhang zum Neutroneneinfang. Die „Nuclear Car Wash“ Methode zielt darauf ab, illegalen Nuklearschmuggel zu detektieren [82, 83, 84]. Es steht also das Auffinden von Spaltmaterial im Fokus und nicht dessen Charakterisierung. Dafür wird das zu untersuchende Objekt -in der Regel ein Container mit „unbekanntem“ Inhalt- mit Neutronen bestrahlt, um gegebenenfalls Spaltungen zu induzieren, deren Gamma-Emissionen dann ein klares Indiz für die Anwesenheit von Spaltmaterial wäre. Ähnliches gilt für die Prompte Gamma Aktivitäts-Bildgebung mit Neutronentomographie (Englisch: *Prompt Gamma Activation Imaging with Neutron-Tomography*, PGAI-NT), bei der kleine Objekte wie Uran-Pellets auch in abschirmenden Containern aus Blei in drei Dimensionen abgebildet werden können [85].

Die meisten Veröffentlichungen, die sich konkret mit Neutroneneinfang in Plutonium beschäftigen, stammen aus den 1970ern und 1980ern [86, 87, 88, 89, 90,

¹⁰Persönliche Kommunikation mit Volker Dangendorf, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig, 30. November 2011

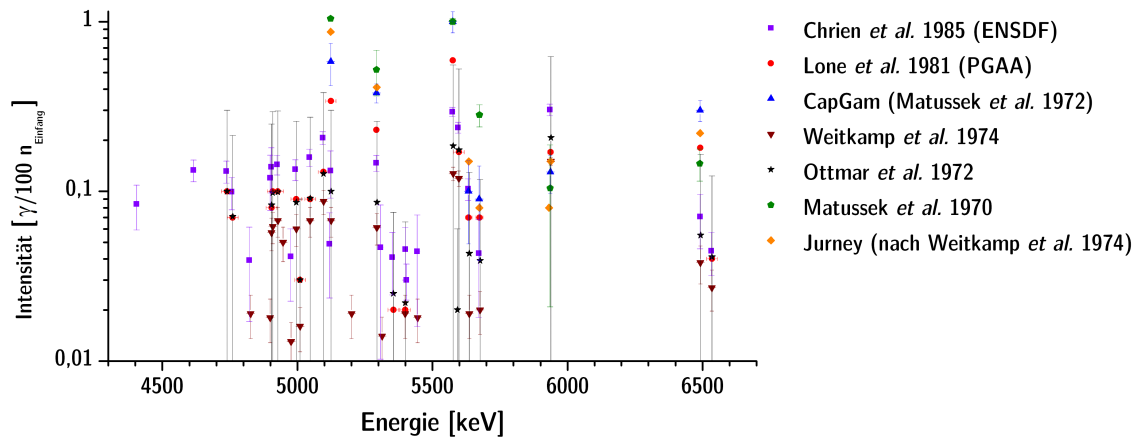


Abbildung 1.6 – Publierte spezifische hoch-energetische Gamma-Intensitäten für thermische Neutroneneinfänge in Plutonium-239. Daten aus [86, 87, 88, 89, 90, 91]. Die Zugehörigkeit der Messreihen zu den jeweiligen Referenzen ist in der Plot Legende spezifiziert.

92, 91, 93, 94, 95, 96, 97]. Damals wurden die Neutroneneinfangsreaktionen an verschiedenen Isotopen untersucht, um die spezifische Atomlevelstruktur der Isotope zu untersuchen, weshalb man möglichst reine Isotope bestrahlte und nicht Isotopen-Mischungen. Entsprechend wurden keine Erkenntnisse über die Möglichkeiten so auch die Isotopenzusammensetzung zu messen gewonnen. Darüber hinaus wurden immer die thermischen Einfangwirkungsquerschnitte gemessen. Gleichwohl wurde das Potential für Safeguards Anwendungen¹¹ schon damals erkannt und angesprochen [88]. Die in den oben genannten Publikationen veröffentlichten Intensitäten für Plutonium-239 wurden zur Verdeutlichung in Abbildung 1.6 grafisch aufbereitet. Die Energien der Übergänge stimmen sehr gut miteinander überein, während die Intensitäten um bis zu eine Größenordnung voneinander abweichen. Dies liegt vor allem daran, dass der Fokus auf der genauen Bestimmung der Energieniveaus und damit auf der Energie der Übergänge in Plutonium-240¹² lag und nicht auf der Bestimmung der Übergangswahrscheinlichkeiten. Weitkamp *et al.* [91] haben systematisch die niedrigsten Übergangswahrscheinlichkeiten gemessen. Die relativen Intensitäten aus der Veröffentlichung von Matussek *et al.* 1970 [88] wurden mit der absoluten Intensität des stärksten Übergangs aus der CapGam Datenbank umgerechnet. Die sich so ergebenden Übergangswahrscheinlichkeiten sind in vier von sechs Fällen die höchsten gemessenen. Die Intensitäten der anderen Arbeitsgruppen befinden sich dazwischen, wobei die von Lone *et al.* [87] und Ottmar *et al.* [90] systematisch niedriger sind als die von Chrien *et al.* [86], Journey [91] und Matussek *et al.* 1972 [89]. Steve Fetter hat 1990 den Anteil der Gammastrahlung, der aus verschiedenen Modellen einer Nuklearwaffe austritt, simuliert [98], sowie die absolute Rate der stärksten Gammalinien eben jener Nuklearwaffenmodelle [99]. Er findet die stärksten Gammalinien für drei der betrachteten Modelle bei 1.001 MeV aus einem Zerfallsprodukt von Uran-238 mit 30 bis 100 000 Gammastrahlen pro Sekunde und beim

¹¹Maßnahmen zur Überwachung von Nuklearmaterial

¹²Durch den Neutroneneinfang in Plutonium-239 entsteht ein angeregtes Plutonium-240 Isotop, dass dann die überschüssige Energie in Form von Gammastrahlung wieder abgibt.

vierten Modell (waffengrädiges Plutonium mit Wolframabschirmung) bei 1.6 MeV mit 1 000 Neutronen-induzierten Gammastrahlen pro Sekunde [99].

Neutroneneinfang in Uran dagegen wurde auch in der jüngeren Vergangenheit untersucht und zwar auch im Hinblick auf die Isotopenzusammensetzung: Eine Forschungsgruppe um Gábor Molnár in Budapest konnte 2004 zeigen, dass es möglich ist mit der Aktivitäts-Analyse prompter Gammastrahlung aus Neutroneneinfängen den Isotopenvektor von Uran bis zu einem Anreicherungsgrad von 36 % Uran-235 festzustellen [100]. Für die Berechnung der Isotopenzusammensetzung werden zwei hoch-energetische Gammalinien bei 4060 keV (Uran-238) und 6395 keV (Uran-235) verwendet, mit dem Vorteil, dass „die Messung unempfindlich gegenüber der Probengröße, der Geometrie oder selbst des Verpackungsmaterials ist“¹³ [100]. Die 4060 keV Linie des Uran-238 wird durch das kurzlebige Uran-235 Zerfallsprodukt Rubidium-90 gestört, die Korrektur dieser Störung führt zu sehr großen Unsicherheiten bei hohen Uran-235 Anreicherungsgraden. Im selben Jahr kam eine Forschungszusammenarbeit eben jener Gruppe aus Budapest mit den amerikanischen *National Laboratories* in Berkeley und Livermore zu dem Schluss, dass es prinzipiell möglich ist Prompte Gamma-Aktivitäts-Analyse (PGAA) und Neutronen Aktivierungs-Analyse (NAA) Experimente mit einem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator (D-D ENG) durchzuführen, wobei allerdings auf zukünftige Entwicklungen verwiesen wird [101]. 2007 wurde darüber hinaus gezeigt, dass die Bestimmung des Anreicherungsgrades für niedrige Uran-235 Anreicherungen auch bei zusätzlicher Abschirmung durch einen Container möglich ist [102]. 2010 haben Wissenschaftler am *Idaho National Laboratory* in den USA in Modellversuchen versucht, die Isotopenzusammensetzung von Uran mit einem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator zu messen [103]. Im entsprechenden Jahresbericht des *Idaho National Laboratory* zeigen sich die Wissenschaftler überrascht, dass solche Messungen noch nicht durchgeführt worden sind und dokumentieren ausführlich ihre Ergebnisse, wobei die publizierten Spektren den gesamten Energiebereich bis 11 MeV abdecken. Sie kommen zu dem Schluss, dass existierende tragbare PGAA Instrumente mit kleinen Neutronenquellen für Routine Safeguards-Messungen in den meisten Fällen nicht ausreichend sind;¹⁴ insbesondere für hoch-angereichertes Uran konnten keine erkennbaren PGAA Linien identifiziert werden [103]. Diese Analyse berücksichtigt allerdings nicht die Möglichkeit, die schnellen Neutronen aus Elektronischen Generatoren oder radioaktiven Neutronenquellen zu moderieren, worauf in der vorliegenden Arbeit ein Schwerpunkt liegt.

Es gibt zwei große Datenbanken, die die (n, γ) -Intensitäten, bzw. spezifischen Wirkungsquerschnitte für Neutroneneinfang zusammenfassen. Die *Database for Prompt Gamma-ray Neutron Activation Analysis* wurde von 1999 bis 2003 von dem IAEA Nuklearen Daten Service (NDS) erstellt und umfasst alle natürlichen Elemente, also bis inklusive der Kernladungszahl $Z=92$ und damit noch Uran aber nicht mehr Plutonium [104]. Für letzteres wird auf eine Publikation von Lone *et al.* [87] verwiesen. Die zweite große Datenbank ist die *Thermal Neutron Capture gamma's*

¹³ „the measurement is insensitive to the sample size, the geometry or even the packing material“

¹⁴ „Unfortunately, the small reaction cross sections for the interactions of interest in this area lead to the conclusion that the lower-yield neutrons sources available in field-portable PGAA instruments, such as INL's PINS system, are insufficient for routine safeguards measurements in most cases.“

database (CapGam). Sie wird vom *Laboratory National Nuclear Data Center* (BNL NNDC) gepflegt, wurde zuletzt im Jahr 2013 aktualisiert und geht bis zu Berkelium mit der Kernladungszahl $Z = 97$ [105]. Diese beide Datenbanken stützen sich auf unterschiedliche Publikationen und kommen damit zu unterschiedlichen Ergebnissen für die spezifischen Einfangwirkungsquerschnitte, vergleiche Abbildung 1.6. Diese Unsicherheit der spezifischen Einfangwirkungsquerschnitte erschwert die Einschätzung der Eignung von Gammastrahlung aus Neutroneneinfängen zur Identifizierung und Charakterisierung von Spaltmaterial.

Kapitel 2

Physikalische Grundlagen

2.1 Gammaspektroskopie

Es gibt verschiedene Strahlungsdetektoren, mit denen man mitunter verschiedene Strahlungsarten messen kann und die sich darüber hinaus in ihren Charakteristika unterscheiden. Zur Identifizierung von Isotopen eignet sich die Gammastrahlung am besten, da ihre von den Atomleveln abhängige Quantisierung zu einem eindeutigen radioaktiven Fingerabdruck der ausstrahlenden Isotope führt. Messmethoden bei denen man die charakteristische Gammastrahlung nutzt, um Stoffe zu identifizieren, bezeichnet man als *Gammaspektroskopie*. Darüber hinaus kann man bei Kenntnis der Effizienz des Detektors und der Geometrie die Stoffe quantifizieren, dann spricht man von *Gammaspektrometrie*. Die verbreitetsten Gammadetektoren sind Szintillationszähler mit Natriumiodid (NaI) und Halbleiterdetektoren mit hochreinem Germanium (Englisch: *High-Purity Germanium detector*, HPGe). Germaniumdetektoren haben gegenüber den Natriumiodiddetektoren zwar eine geringere Effizienz, dafür aber eine deutlich höhere Auflösung, weshalb sie zur Identifizierung von Isotopen besonders gut geeignet sind.

Abbildung 2.1 zeigt die energieabhängige Wechselwirkung von Gammastrahlung mit Germanium. Die Grafik wurde mit Daten von G.T. Chapman erstellt [106], wobei die Compton-Streuung und die Gesamtabsorption hier ohne die kohärente Streuung angegeben sind. Die Absorption wird im unteren Energiebereich von dem Photoelektrischen Effekt (grüne Kurve) dominiert, bei dem die gesamte Energie des Gammaquants aufgenommen wird. Im Energiebereich zwischen circa 0.15 MeV und ungefähr 8.3 MeV dominiert der Compton Effekt (orange Kurve), bei dem das Gammaquant mit einem Elektron im Germanium zusammenstößt und dabei einen Teil seiner Energie abgibt. Der maximal mögliche Energieübertrag auf das Elektron ergibt sich, wenn das Photon direkt auf das Elektron trifft:

$$E_{ck} = E_{pp} / \left(1 + \frac{m_e \cdot c^2}{2 \cdot E} \right), \quad (2.1)$$

wobei m_e die Masse des Elektrons, c die Lichtgeschwindigkeit und E_{pp} die Energie des Photopeaks bezeichnet. Trifft das Gammaquant das Elektron unter einem Winkel, der kleiner ist als 180° , so wird ein kleinerer Energiebetrag übertragen und verlässt das Photon in Folge ohne weitere Wechselwirkungen den Germaniumkris-

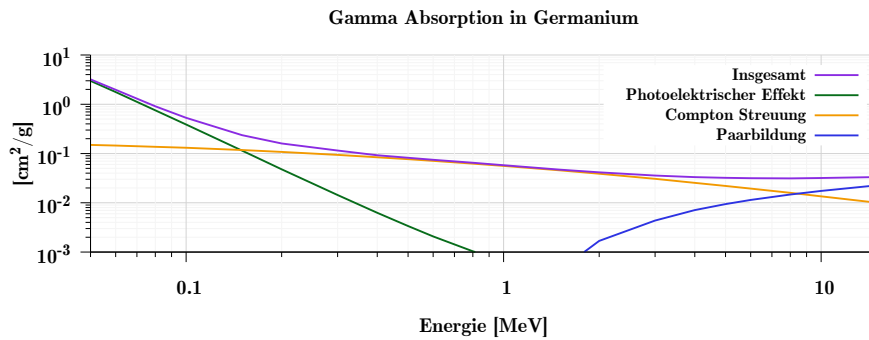


Abbildung 2.1 – Energieabhängige Gamma Absorption in Germanium in cm^2/g von 0.05 MeV bis 15 MeV und die Beiträge der verschiedenen physikalischen Effekte Paarbildung, Compton Streuung und Photoelektrischer Effekt. Grafik erstellt mit Daten aus [106].

tall, so entsteht unterhalb dieser maximalen Energie ein Beitrag zum sogenannten Compton-Kontinuum. Da dieses Kontinuum nur bis zum maximal möglichen Energieübertrag E_{ck} geht, gibt es bei dieser Energie einen starken Abfall in der Gamma-Zählrate, welchen man als Compton-Kante bezeichnet. Der Compton-Untergrund kann unterdrückt werden, indem man einen weiteren Detektor um das Germanium platziert, der das nach dem Stoß den Detektor verlassende Gammaquant detektiert und dadurch ein *Gate* schließt, sodass das entsprechende Signal im Germaniumdetektor nicht mit aufgezeichnet wird [107]. Da bei der Detektion im den Germaniumkristall umgebenden Material die Energieauflösung keine Rolle spielt, werden dafür wegen ihrer höheren Effizienz Szintillatoren eingesetzt. Entsprechende Spektren mit und ohne Compton-Unterdrückung sind zum Beispiel in Abbildung 3a in [108] zu sehen.

Im Energiebereich über ungefähr 8.3 MeV dominieren Paarbildungseffekte die Wechselwirkung der Gammastrahlung mit dem Germanium, siehe blaue Kurve in Abbildung 2.1. Dabei entsteht im Kraftfeld der Atomkerne des Germaniums ein Elektron-Positron Paar. Dieser Effekt kann mit einer deutlich geringeren Wahrscheinlichkeit im (vergleichsweise schwachen) Kraftfeld der Elektronen stattfinden. Der Großteil der dabei entstehenden Elektronen und Positronen wird im Germaniumdetektor absorbiert und trägt zur gemessenen Energie bei. Es kommt aber vor, dass eines der beiden oder sogar beide Teilchen den Detektor verlassen. Dann wird die Energie des Gammaquants um die ein- oder zweifache Ruheenergie eines Elektrons reduziert, also um 511 keV oder 1022 keV (Letzteres mit einer geringeren Wahrscheinlichkeit). Je nach Größe des Detektorkristalls, kommt dies praktisch immer vor, sodass unterhalb von einem starken Photopeak, dessen *Single-* und *Double-Escape* Peak gut sichtbar sind. Darüber hinaus kann es in der Folge auch zum umgekehrten Effekt kommen, nämlich, dass ein Positron auf ein Elektron trifft und die beiden annihilieren. Bei dieser Paarvernichtung werden zwei 511 keV Gammaquanten frei, von denen in den meisten Fällen nur eines detektiert wird. Dann tritt bei 511 keV der sogenannte Paarvernichtungspeak auf.

Abbildung 2.2 zeigt das Ergebnis der beschriebenen Wechselwirkungen von Gammastrahlung in einem Germaniumdetektor. Der Photopeak bei einer Energie von

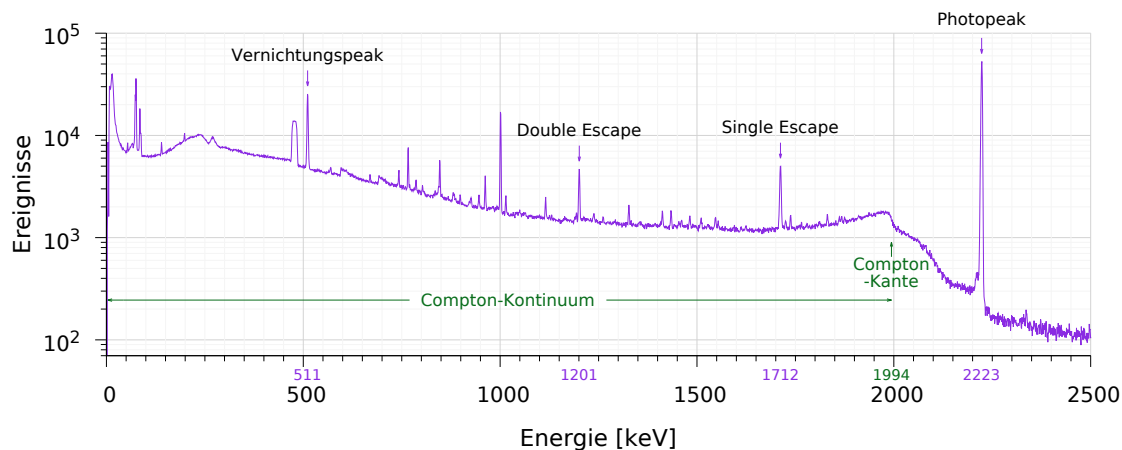


Abbildung 2.2 – Ergebnis der Wechselwirkung von Gammastrahlung in einem Germaniumdetektor.

2223 keV hat seinen *Single-Escape* Peak bei 1712keV und seinen *Double-Escape* Peak bei 1201keV. Die Compton-Kante des Photopeaks ergibt sich mit Formel 2.1 zu 1994 keV. Darunter erstreckt sich das Compton-Kontinuum. Darüber hinaus sind eine Reihe weiterer Photopeaks zu sehen, zum Beispiel bei 1001 keV und 479 keV. Unabhängig von den Photopeaks befindet sich der Vernichtungspeak immer bei genau 511 keV. Die Peakfläche ist definiert als das Integral über den Peak minus den Untergrund. Das Verhältnis zwischen der Zählrate im Peak und dem Untergrund ist ein wichtiger Indikator für die Identifizierbarkeit eines Peaks. Bei Germaniumdetektoren mit Compton-Unterdrückung wird der Hintergrund reduziert und so das Peak-zu-Untergrund Verhältnis verbessert.

2.2 Strahlender Neutroneneinfang

Beim strahlenden Neutroneneinfang wird ein Neutron von einem Atomkern eingefangen, ohne dass dabei massereiche Teilchen emittiert werden.¹ Überschüssige Energie wird dabei in Form von Gammastrahlung abgegeben, siehe Abbildung 2.3, unten. Im Englischen wird dieser Prozess als *radiative neutron capture* oder *neutron capture* bezeichnet. Andere gängige Bezeichnungen sind Neutroneneinfang, n-gamma-Reaktion, (n, gamma) und (n, γ) .

Man unterscheidet die frei werdende Gammastrahlung in prompte und verzögerte Gammas. Prompte Gammas werden schneller emittiert, als die Zeitauflösung des verwendeten Detektorsystems klein ist; da Letztere typischerweise 10 Mikro- bis 10 Nanosekunden beträgt, kann man den Prompten Gammas den Zeitraum der ersten Emissionen bei 10^{-12} bis hin zu 10^{-9} Sekunden zuordnen [109, 110].²

¹Dies entspricht der engeren Definition eines Neutroneneinfangs. Gelegentlich werden auch neutroneninduzierte Reaktionen bei denen massereiche Teilchen emittiert werden, als Neutroneneinfänge bezeichnet, wie zum Beispiel (n, α) -Reaktionen. In dieser Arbeit wird ausschließlich die zuerst genannte engere Definition verwendet.

²Die Unterscheidung zwischen prompter und verzögerter Gammastrahlung ist für Neutroneneinfänge anders definiert als für Spaltungen.

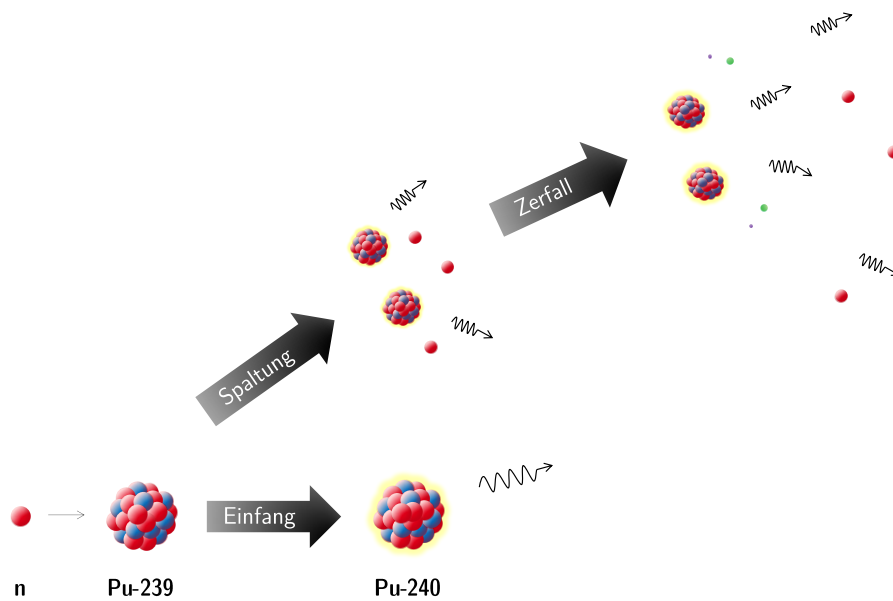


Abbildung 2.3 – Schematische Darstellung des Ergebnisses einer Neutroneneinfangsreaktion (unten) und einer induzierten Spaltung (oben) in Plutonium-239.

Bei der Analyse dieser Strahlung spricht man von Prompter Gamma-(Neutronen)-Aktivierungs-Analyse (PGAA oder PGNA, Englisch: *Prompt Gamma (Neutron) Activation Analysis*) oder Neutronen-Induzierter Prompter (Gamma) Spektroskopie (NIPS, Englisch: *Neutron-Induced Prompt (Gamma) Spectroscopy*). Da die angeregten Kerne die überschüssige Energie möglichst schnell abgeben, werden zunächst hoch-energetische Übergänge bevorzugt. Direkt darauf folgen die verzögerten (Englisch: *delayed*) Gammas, die typischerweise niedrigere Energien haben. Durch die Absorption des Neutrons bildet sich ein neuer Atomkern, der aus dem einfangenden Kern und dem Neutron zusammengesetzt ist. Der neue zusammengesetzte Kern (Englisch: *compound nucleus*) hat durch den Einfang des Neutrons eine um jeweils eins erhöhte Anzahl an Neutronen N und Massenzahl A , während sich die Zahl der Protonen Z -und damit das Element- nicht ändert.

Durch den Einfang wird das Neutron im Atomkern gebunden und dadurch die Bindungsenergie, sowie die kinetische Energie des zusätzlichen Neutrons frei. Die kinetische Energie kann beliebig sein, beziehungsweise ist sie von der Neutronenquelle und gegebenenfalls von moderierenden Effekten abhängig. Mit der kinetischen Energie des Neutrons variiert allerdings die Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein strahlender Neutroneneinfang stattfindet. Die Bindungsenergie ist von der Struktur des Atomkerns abhängig. Für die betrachteten Isotope Plutonium-239, Plutonium-240, Uran-235 und Uran-238 betragen die freiwerdenden Bindungsenergien 6534.20 keV, 5241.52 keV, 6545.46 keV und 4806.38 keV [111]. Wie bei der passiven Gammaskopie ist die freiwerdende Gammastrahlung abhängig von der atomaren Struktur des neu gebildeten Kerns. So verhält es sich auch mit der Bindungsenergie: 6534.20 keV ist die (Separations-) Energie, die man aufwenden muss, um ein Neutron aus Plutonium-240 zu lösen und damit auch die (Bindungs-) Energie, die frei wird, wenn Plutonium-239 ein zusätzliches Neutron einfängt. Wie in der Gamma-

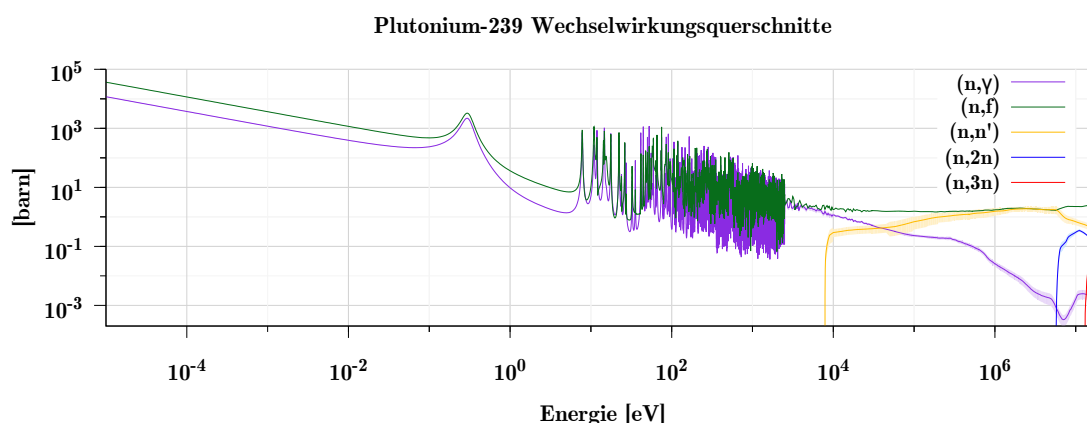


Abbildung 2.4 – Wechselwirkungsquerschnitte für Reaktionen von Neutronen an Plutonium-239. Der doppellogarithmische Plot wurde mit Daten aus der ENDF/B-VII.1 Bibliothek (*Evaluated Nuclear Data File*) [112] erstellt, die mit *Janis 4*, dem *Java-based Nuclear data Information System* der IAEA [113] bezogen wurden.

spektroskopie üblich werden im Folgenden die Gammalinien und Bindungsenergien, die bei der Reaktion $\text{Pu-239}(n, \gamma)\text{Pu-240}$ frei werden, dem Isotop Plutonium-239 zugeordnet. (Und nicht dem Isotop Plutonium-240, aus dessen atomarer Struktur sie sich ergeben.) Bei den beiden Isotopen Plutonium-239 und Uran-235 werden mit 6534.20 keV und 6545.46 keV deutlich höhere Bindungsenergien frei als bei Plutonium-240 und Uran-238 mit 5241.52 keV und 4806.38 keV. Das liegt daran, dass die neuen, zusammengesetzten Kerne eine gerade Anzahl an Neutronen bekommen, wodurch sich die Neutronen paarweise mit antiparallelen Spins ausrichten können und damit energetisch günstiger liegen als im Falle ungerader Neutronenzahlen. Dies führt dazu, dass bei Neutroneneinfängen in Plutonium-239 und Uran-235 deutlich mehr Energie in Form von Gammastrahlen abgegeben wird. Aus demselben Grund haben Plutonium-240 und Uran-238 eine Spaltschwelle, bei der sich die Wahrscheinlichkeit für Spaltungen signifikant ändert. Die Spaltschwelle ist für Uran-238 mit circa 1 MeV deutlich größer als für Plutonium-240, bei dem sie so klein ist, dass es durch Quantentunneln sogar zu spontanen Spaltungen kommt, obwohl Plutonium-240 thermisch eigentlich nicht spaltbar ist.³

In Konkurrenz zum Neutroneneinfang in einem Atomkern steht die induzierte Spaltung des Kerns. Da in dieser Arbeit der Neutroneneinfang betrachtet wird, ist die induzierte Spaltung ein unerwünschter Konkurrenzprozess. In Kernreaktoren verhält es sich umgekehrt: Dort ist die induzierte Spaltung die gewünschte Reaktion, durch die Energie und Neutronen frei werden. In kommerziellen Atomkraftwerken überwiegt der Uran-238 Anteil bei weitem den von Uran-235, und durch Neutroneneinfang entsteht vor allem das instabile Uran-239, das wiederum über zwei β^- -Zerfälle in Plutonium-239 zerfällt. So wird das Element Plutonium erzeugt, das zweite wichtige Spaltmaterial, das im Reaktor selbst zur Energieerzeugung beiträgt, aber auch abgetrennt und zum Bau von Atomwaffen verwendet werden kann.

³Die Wechselwirkungsquerschnitte für Plutonium-240 und Uran-238 sind in Abbildung B.5 auf Seite 149 dargestellt.

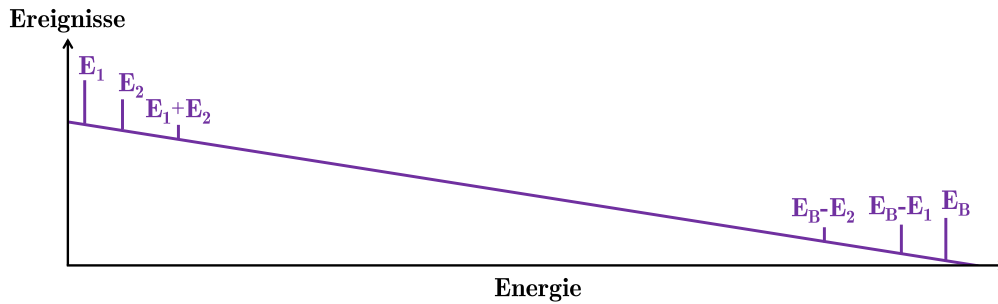


Abbildung 2.5 – Der Großteil der von großen Atomkernen durch Neutroneneinfang emittierten Gammastrahlung formt ein Kontinuum, sodass die einzelnen Beiträge der Übergangslinien nicht aufgelöst werden können. Nur am oberen und unteren Rand des Spektrums können die spezifischen Übergangslinien nachgewiesen werden, Grafik nach Molnár *et al.* [109].

Die induzierte Spaltung wird auch als $(n, fission)$ oder (n, f) bezeichnet, analog zur Reaktionsbeschreibung beim Neutroneneinfang, wobei auch im Deutschen das englische Wort für Spaltung, *fission* verwendet wird. Dabei entsteht für den sehr kurzen Zeitraum von 10^{-21} bis 10^{-20} Sekunden ein zusammengesetzter Atomkern, der jedoch nicht stabil ist und sofort wieder zerfällt [114]. Die dabei entstehenden Teilchen sind in Abbildung 2.3, oben schematisch dargestellt. Die beiden neu entstehenden Atome werden als Spaltfragmente bezeichnet, zusätzlich werden im Mittel zwei bis drei Neutronen und ziemlich genau acht Gammaquanten pro Spaltung frei, die die überschüssige Energie tragen [115]. Die Anzahl dieser emittierten Gammas, beziehungsweise Neutronen bezeichnet man als (Gamma-, beziehungsweise Neutronen-) Multiplizität. Die Spaltfragmente selbst sind wiederum instabil und zerfallen im Mittel nach einer Halbwertszeit wieder, wodurch weitere Gammastrahlung, Elektronen und Neutrinos abgestrahlt werden. Die Halbwertszeit der Spaltfragmente ist deutlich länger, als die Zeitskalen, auf denen die Spaltung und der Neutroneneinfang ablaufen. Ihr Zerfall tritt also verzögert auf.

Ob es zu einem Neutroneneinfang oder einer induzierten Spaltung kommt ist ein rein statistischer Prozess. Der Wahrscheinlichkeit einer Wechselwirkung wird eine virtuelle Reaktionsfläche zugeordnet, der Wechselwirkungsquerschnitt. Wechselwirkungsquerschnitte werden in *barn* angegeben, wobei $1 \text{ b} = 10^{-28} \text{ m}^2$. Die wichtigsten Wechselwirkungsquerschnitte für Plutonium-239 sind in Abbildung 2.4 dargestellt. Das einfallende Neutron wird weder von der Elektronenhülle noch von dem Atomkern abgestoßen, da es keine elektrische Ladung besitzt. Damit gibt es keine Mindestenergie, die das Neutron überwinden muss, um mit dem Kern zu verschmelzen. Tatsächlich ist die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit sogar für sehr kleine Neutronenenergien am höchsten, siehe grüne und lila Kurve in Abbildung 2.4. Aus dieser Abbildung ist ersichtlich, dass die induzierte Spaltung (grüne Kurve) in Plutonium-239 bevorzugt wird. Das gleiche gilt für Uran-235.⁴ In Plutonium-240 und Uran-238 dominiert für Neutronen mit einer Energie unterhalb der Spaltschwelle bei circa 1 MeV der Neutroneneinfang, darüber dominieren die induzierten Spaltungen.⁵ Bei

⁴Siehe Abbildung B.5 auf Seite 149 im Anhang.

⁵*ibid.*

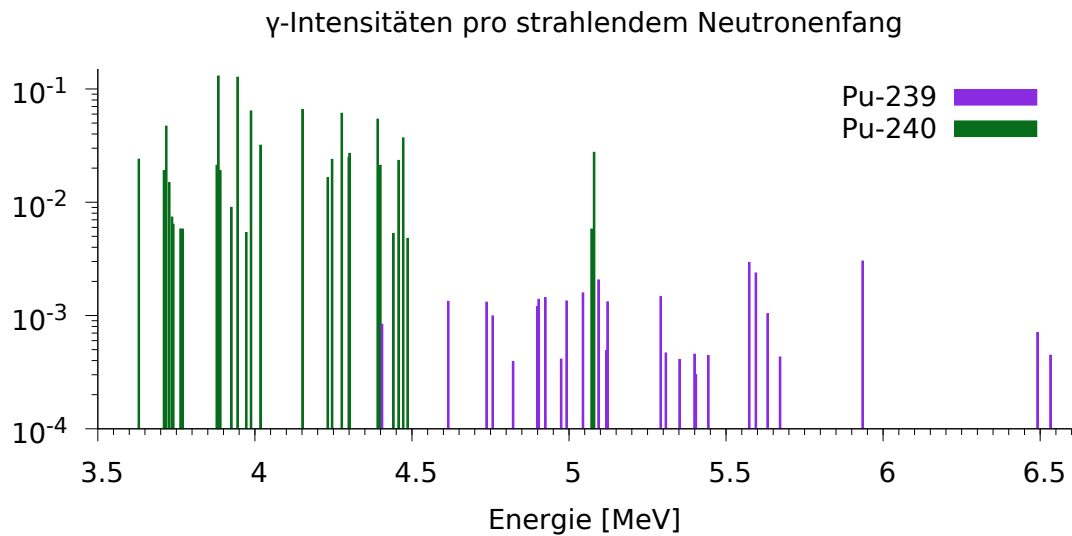


Abbildung 2.6 – Halblogarithmische Darstellung der gemittelten hoch-energetischen Gamma-Intensitäten pro Neutroneneinfang in Plutonium-239 (Daten aus Chrien *et al.* [86], lila) und in Plutonium-240 (Daten aus der *CapGam* Bibliothek [105], grün).

höheren Energien können die Neutronen inelastisch am Spaltmaterial streuen, im Falle von Plutonium-239 ab circa 7 keV (orange Kurve). Sind die einfallenden Neutronen schnell genug - und haben also genug Energie- können sie zusätzliche Neutronen aus dem Atomkern stoßen (blaue und rote Kurve). Alle diese Reaktionen konkurrieren miteinander und das Ergebnis fällt je nach Energie des einfallenden Neutrons unterschiedlich aus.

Die Gammaquanten, die bei der induzierten Kernspaltung frei werden, tragen einen Teil der überschüssigen Energie aus der Spaltreaktion. Direkt nach der Spaltung emittieren die angeregten Spaltfragmente zunächst Neutronen, solange ihre Anregungsenergie groß genug ist, um die Bindungsenergie der Neutronen aufzubringen. Die danach verbleibende Anregungsenergie wird über im Mittel 8.095 prompte Gammaquanten pro Kernspaltung emittiert [115]. Durch die große Menge an möglichen Spaltprodukten und deren angeregten Zuständen ergibt sich im Mittel ein kontinuierliches Energiespektrum [116].⁶ Beim Neutroneneinfang dagegen wird die Energie von einem einzigen Atomkern emittiert. Ist die Levelstruktur dieses Kerns allerdings sehr komplex, kann es dazu kommen, dass es auch hier so viele wohldefinierte Übergangslinien gibt, dass diese sich wiederum in einem solche Maße überlagern, dass ein Kontinuum entsteht. Dies ist bei sehr schweren Kernen und bei sehr hohen Energieniveaus der Fall, also auch beim Neutroneneinfang in Spaltmaterial [109]. Dadurch kann der größte Teil der emittierten Gammaquanten nicht spezifischen Linien zugeordnet werden, sondern dies ist nur noch an den Enden des Spektrums der Fall, vergleiche Abbildung 2.5. Das nieder-energetische Ende des Spektrums wird deutlich stärker von Materie abgeschwächt, als das hoch-energetische - sowohl von

⁶Siehe Abbildung 3.4 auf Seite 42.

dem Spaltmaterial-Target selbst, als auch von externer Abschirmung.⁷ Abbildung 2.6 zeigt die erwarteten hoch-energetischen Gammaübergänge nach Neutroneneinfangsreaktionen in Plutonium-239 und in Plutonium-240. Da die Bindungsenergie E_B des eingefangenen Neutrons in Atomkernen mit einer ungeraden Anzahl an Neutronen wie Plutonium-239 und Uran-235 signifikant höher ist,⁸ als die beim Neutroneneinfang in Atomkernen mit einer geraden Anzahl an Neutronen wie Plutonium-240 und Uran-238, liegen die Enden der beiden Spektren der zwei betrachteten Isotope eines Elements zwar jeweils nicht direkt übereinander, die Spektren der sichtbaren Linien überschneiden sich jedoch. Dies ist für die Bestimmung des Isotopenverhältnisses vorteilhaft, da so von der Gammaenergie abhängige Prozesse wie die Effizienz des Detektors und die Abschwächung der Gammastrahlung in Materie nicht so stark ins Gewicht fallen.

⁷Vergleiche Abbildung 3.11 auf Seite 54

⁸Die Differenz beträgt 1292.68 keV für Plutonium-239 und Plutonium-240 und 1739.08 keV für Uran-235 und Uran-238.

Kapitel 3

Analytische Abschätzungen

Um die Gammasignatur einer gegebenen Kombination aus Neutronenquelle und Spaltmaterial analytisch abschätzen zu können, wurden mit der Software *Wolfram Mathematica 9* [117] eigene Skripte entwickelt. Diese erlauben es Plutonium- und Uran-Targets mit beliebiger Isotopenzusammensetzung und Masse zu spezifizieren. Es können verschiedene Neutronenquellen ausgewählt werden, deren Neutronenflussdichten wiederum variabel sind. Die *Mathematica* Skripte sind komplett im Anhang B.5 wiedergegeben.

Die im Rahmen der analytischen Abschätzungen getroffenen Annahmen werden im folgenden Abschnitt 3.1 *Annahmen* erläutert. Im Abschnitt 3.2 *Methodik* wird näher auf die betrachteten nuklearen Reaktionen im Spaltmaterial-Target eingegangen und in Abschnitt 3.3 auf die wichtigsten Ergebnisse. Abgeschlossen wird das Kapitel *Analytische Abschätzungen* durch ein *Zwischenfazit* in Abschnitt 3.4.

3.1 Annahmen

In diesem Abschnitt wird erläutert, wie die Neutronenquelle, die Spaltmaterial-Targets und der Germanium Detektor in den analytischen Abschätzungen berücksichtigt werden. Die grundlegenden Annahmen sind zunächst sehr simpel: Die Neutronen aus der Neutronenquelle treffen auf das Target aus Spaltmaterial und die von dem Spaltmaterial ausgehenden Photonen werden von einem Gammadetektor regis-

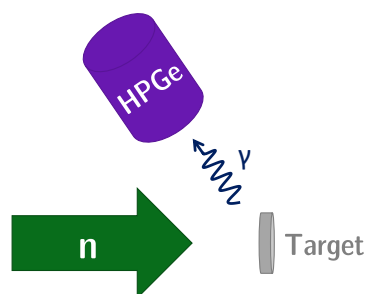


Abbildung 3.1 – Schema der analytischen Abschätzung: Die Neutronen (n) treffen auf das Target und die von dem Target in dessen Richtung emittierte Gammastrahlung (γ) wird in dem Detektorkristall aus hoch-reinem Germanium (HPGe) detektiert.

triert, siehe Abbildung 3.1. Das Target ist eine Zylinderscheibe. In den folgenden Unterabschnitten wird im Einzelnen genauer auf diese drei Komponenten eingegangen.

3.1.1 Neutronenquellen

Für die Auswahl geeigneter Neutronenquellen wurde eine Reihe gängiger Neutronenquellen mit mittleren Neutronenenergien unterhalb von 20 MeV betrachtet, wobei ein Schwerpunkt auf portable Quellen gesetzt wurde: mehrere Forschungsreaktoren; Elektronische Neutronengeneratoren (mit Deuterium-Deuterium, Deuterium-Tritium und Tritium-Tritium Neutronenröhren); sowie die radioaktiven Neutronenquellen Californium-252 und Americium-241/Beryllium. Andere Neutronenquellen, wie zum Beispiel Spallationsquellen werden nicht näher betrachtet. Die zur Zeit stärkste Neutronenquelle der Welt ist die Spallationsquelle am Institut Laue-Langevin (ILL), mit einer nominellen integralen Neutronenflussdichte von $1.3 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ [125]. Der Forschungsreaktor FRM-II in München hat mit $8 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ aber nur eine etwas geringere nominelle integrale Neutronenflussdichte [125] und die Neutronen haben sehr niedrige Energien und damit hohe Wechselwirkungsquerschnitte für Neutroneneinfänge. Der Fokus liegt auf transportablen Quellen, da diese für potentielle zukünftige Anwendungen in der Abrüstungsverifikation von Kernwaffen besser geeignet scheinen. Die sich noch im Bau befindliche Europäische Spallationsquelle ESS soll nach ihrer Fertigstellung alle anderen Neutronenquellen um bis zu einen Faktor 100 übertreffen [126]. Falls die Portabilität der Neutronenquelle in Zukunft als verzichtbar angesehen werden kann, bietet sich eine Bewertung der Attraktivität der ESS Spallationsquelle für die Abrüstungsverifikation an.

Eine Übersicht der betrachteten Neutronenquellen mit Spezifikationen, Referenzen und Anmerkungen ist in Tabelle 3.1 aufgeführt. Für die Abschätzungen können je nach Verfügbarkeit sowohl die kontinuierliche Neutronenenergieverteilung verwendet werden, als auch die äquivalente thermische Neutronenflussdichte, siehe Abschnitt 3.2.1. Für die elektronischen Neutronengeneratoren geben die meisten Publikationen nur die totalen Neutronenausbeuten an. Die Neutronenflussdichte am Ort des Targets wurde für den Deuterium-Tritium und den Tritium-Tritium Neutronengenerator deshalb jeweils aus dem Verhältnis der totalen Ausbeuten [121] und der Neutronenflussdichte des Deuterium-Deuterium Neutronengenerators am Ort des Targets [103] bestimmt. Für die radioaktiven Quellen Californium-252 und Americium-241/Beryllium wurde eine isotrope Neutronenverteilung und ein Abstand von $r = 2 \text{ cm}$ zwischen Neutronenquelle und Target angenommen.

Einige Spezifikationen wurden bewusst analog zu denen in publizierten Experimenten gewählt, um die Ergebnisse der analytischen Abschätzungen mit den veröffentlichten Messergebnissen vergleichen zu können: der Forschungsreaktor 2 mit Bismut Filter („FR2-Bi“) und mit Scandium Filter („FR2-Sc“), sowie der Deuterium-Deuterium Neutronengenerator („D-D ENG“). Die Anderen orientieren sich an den zu diesem Zeitpunkt potentiell zur Verfügung stehenden Neutronenquellen, mit denen eigene Messreihen geplant wurden: der Forschungsreaktor München-II („FRM-II“), der Forschungsreaktor des *Budapest Neutron Centre* („BNC“), der Deuterium-Tritium Neutronengenerator („D-T ENG“), der Tritium-Tritium Neutronengenera-

Quelle	Neutronen- flussdichte ^a [s ⁻¹ cm ⁻²]	(Mittlere) Neutronen- energie	Referenz	Kommentar ^b	Neutronenenergieverteilung Referenz	rel. Unsi- cherheit ^c
FRM-II	$2.7 \cdot 10^{10}$	0.025 eV	Kudejova <i>et al.</i> [118]	-	Petry [119]	10 %
BNC	$5 \cdot 10^7$	0.025 eV	Belgya, Szentmiklósi ^d	-	Revay <i>et al.</i> [120]	50 %
FR2-Bi	$2 \cdot 10^7$	760 eV	Matussek <i>et al.</i> [88]	Bismut Filter	-	-
FR2-Sc	$2 \cdot 10^5$	2000 eV	Ottmar <i>et al.</i> [90]	Scandium Filter	-	-
D-D ENG	$2 \cdot 10^6$	2.5 MeV	Chichester <i>et al.</i> , Reijonen [103, 121]	$\phi = 10^{11} \text{ s}^{-1}$, $r = 63 \text{ cm}$	Fantidis <i>et al.</i> [122]	20 %
D-T ENG	$2 \cdot 10^6$	14.1 MeV	Chichester <i>et al.</i> , Reijonen [103, 121]	$\phi = 10^8 - 10^{11} \text{ s}^{-1}$, $r = 63 \text{ cm}$	Fantidis <i>et al.</i> [122]	20 %
T-T ENG	$2 \cdot 10^9$	4.5 MeV	Chichester <i>et al.</i> , Reijonen [103, 121]	$\phi = 10^{12} \text{ s}^{-1}$, $r = 63 \text{ cm}$, $E_n = 0 - 9 \text{ MeV}$	Fantidis <i>et al.</i> [122]	20 %
Cf-252	$4.6 \cdot 10^7$	2.14 MeV	Miller [123]	-	Miller [123]	15 %
Am-241/Be	$4.4 \cdot 10^5$	4.5 MeV	Datenblatt ^e	$E_n \approx 4.5 \text{ MeV}$	Guarrini <i>et al.</i> [124]	15 %
th. D-D ENG	$5.6 \cdot 10^6$	0.025 eV	siehe D-D ENG	$T = 0.2817$	MCNP	30 %
th. D-T ENG	$5.6 \cdot 10^6$	0.025 eV	siehe D-T ENG	$T = 0.2817$	MCNP	30 %
th. Am-241/Be	$1.2 \cdot 10^5$	0.025 eV	siehe Am-241/Be	$T = 0.2817$	MCNP	30 %

Tabelle 3.1 – Zusammenfassung der in den analytischen Abschätzungen verwendeten Neutronenquellen und ihrer Spezifikationen.

^aGegebenenfalls das thermische Äquivalent, relative Unsicherheit 1 %^bZusätzliche Informationen: Neutronenfilter, in der Referenz angegebene Neutronenausbeute ϕ , angenommener Abstand zwischen Neutronenquelle und Target r , in der Referenz angegebene (mittlere) Neutronenenergie E_n und angenommener Differenzfaktor durch Thermalisierung T .^cDurch das konvertieren der gedruckten Spektren in digitale Kurven^dPersönliche Kommunikation, 2015^ePersönliche Kommunikation mit Christoph Lierse von Gostomski, 2015, siehe Abbildung A.2 auf Seite 141

tor („T-T ENG“), das Californium-252 („Cf-252“), das Americium-241/Beryllium („Am-241/Be“), der thermalisierte Deuterium-Deuterium Neutronengenerator („th. D-D ENG“), der thermalisierte Deuterium-Tritium Neutronengenerator („th. D-T ENG“) und das thermalisierte Americium-241/Beryllium („th. Am-241/Be“). Im Folgenden werden die drei Neutronenquellen näher betrachtet mit denen Experimente durchgeführt wurden. Dies deckt alle drei betrachteten Typen ab: Forschungsreaktoren, Elektronische Neutronengeneratoren und radioaktive Quellen.

Der **Forschungsreaktor München-II** hat eine Neutronenflussdichte von $7.3 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ am Ort des Targets [118]. Die Neutronen werden mit einer 25 Kelvin kalten Quelle aus flüssigem Deuterium erzeugt [118]. Die Neutronen sind sehr kalt und die Neutronenflussdichte entspricht damit einer noch höheren thermischen Äquivalenzflussdichte von $2.7 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ am Ort des Targets. Im Folgenden wird diese thermische Äquivalenzflussdichte verwendet, da kein vollständiges Spektrum der Neutronenenergieverteilung zur Verfügung stand. Diese sehr großen Neutronenflussdichten sind der große Vorteil von Forschungsreaktoren im Allgemeinen und des Forschungsreaktors München-II im Besonderen. Der Forschungsreaktor München-II hat unter anderem deshalb einen so hohen Neutronenfluss, weil er eine sehr kleine Geometrie hat und weil er mit sehr hoch-angereichertem Uran betrieben wird. Mit einem Uran-235 Anteil von 93 % ist das Uran sogar waffengrädig und der Jahresverbrauch liegt mit 40 kg deutlich über der *Signifikanten Menge* der IAEO (25 kg [27]), im Reaktorkern befinden sich 8 kg waffengrädiges Uran. Die Inbetriebnahme war und der Betrieb ist nicht nur in Deutschland weiterhin ein Politikum und läuft der weltweiten Entwicklung entgegen, Forschungsreaktoren bewusst auf niedrig-angereichertes Uran umzustellen [127]. Der Forschungsreaktor München-II wird hier vorgestellt, weil seine sehr hohe Neutronenflussdichte das obere Ende des derzeit Möglichen darstellt. Die in Kapitel 4 vorgestellten Messungen wurden am Forschungsreaktor des *Budapest Neutron Centre* durchgeführt, der sich was die analytischen Abschätzungen angeht vor allem durch eine niedrigere Neutronenflussdichte vom Forschungsreaktor München-II unterscheidet, ansonsten aber sehr gut vergleichbar ist.

Bei dem hier betrachteten **Elektronischen Neutronengenerator** wird **Deuterium mit Deuterium** fusioniert. Ein solcher von Chichester *et al.* bei einem PGAA Experiment verwendeter Neutronengenerator hatte laut Publikation eine Neutronenausbeute von nur $2 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ insgesamt und einen Abstand vom Spaltmaterial-Target von 20 cm [103]. Damit ergibt sich bei einer isotropen Neutronenverteilung nur eine Neutronenflussdichte von $4 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ am Ort des Targets. Diese Neutronenflussdichte liegt weit unter dem Möglichen. Fantidis *et al.* und Reijonen geben die Neutronenausbeuten ihrer Deuterium-Deuterium Neutronengeneratoren mit 10^{11} s^{-1} an [121, 122]. Damit ergibt sich bei einer isotropen Neutronenverteilung selbst in 63 cm Abstand noch eine Neutronenflussdichte von $2 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$. Diese Neutronenflussdichte am Ort des Targets wird im Folgenden angenommen, vergleiche Tabelle 3.1. Die Energieverteilung der Neutronen wird von Fantidis *et al.* übernommen [122], die mittlere Energie beträgt circa 2.5 MeV, siehe auch [101]. Die Neutronenflussdichte ist signifikant niedriger als die des Forschungsreaktors München-II, dafür hat der Deuterium-Deuterium-Neutronengenerator den entscheidenden Vorteil tragbar zu sein, sodass das Target nicht zur Neutronenquelle gebracht werden muss, sondern dies auch anders herum möglich ist. Das spielt insbesondere

Target	Masse g	Querschnitt* cm ²	Dicke* cm	Isotop	wt% ⁺
Chichester <i>et al.</i> [103]	610 ± 1	104.04 ± 1.04	0.3 ± 0.003	U-235	90 ± 1
				U-238	10 ± 1
HEU	1 ± 0.01	1 ± 0.01	0.05 ± 0.0005	U-235	90 ± 0.01
				U-238	10 ± 0.01
WGPu	1 ± 0.01	1 ± 0.01	0.05 ± 0.0005	Pu-239	95 ± 0.01
				Pu-240	5 ± 0.01

* in Richtung der Neutronenquelle

+ Gewichtsprozent

Tabelle 3.2 – Zusammenfassung der Eigenschaften der für die analytischen Abschätzungen definierten drei metallischen Spaltmaterial-Targets.

bei sehr sensiblen Targets wie Kernwaffen eine große Rolle. Es besteht die Möglichkeit, schnelle Neutronen zu moderieren, wobei die Neutronen durch inelastische Stöße Energie an das moderierende Material abgeben und dadurch abgekühlt werden. Dies führt auch zu einer räumlichen Streuung, wodurch die Neutronenflussdichte am Ort des Targets bei einer ungünstigen Geometrie abnehmen kann. Andererseits können gerade bei isotropen Quellen durch geschickte (Rück-)Streuung auch Neutronen auf das Target gelenkt werden, die ursprünglich in eine andere Richtung emittiert wurden. Der Aufbau wird dann entsprechend komplex und es bleibt wichtig den Abstand zwischen Neutronenquelle und Spaltmaterial-Target möglichst zu minimieren.

Ähnliches gilt für die **radioaktive Quelle Americium-241/Beryllium**, die auch tragbar ist. Americium-241/Beryllium Quellen kombinieren eine lange Halbwertszeit und niedrige Gamma-Strahlendosis mit einer relativ hohen Neutronenausbeute [128]. Die für die analytischen Abschätzungen angenommene Americium-241/Beryllium Quelle hat eine Aktivität von 10 Curie und eine Neutronenflussdichte von $2.2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ insgesamt, die isotrop abgestrahlt werden, genau wie die später im Experiment verwendete Americium-241/Beryllium Quelle.¹ Die Neutronenflussdichte am Ort des Targets ergibt sich also aus dem Abstand $r = 2 \text{ cm}$ zwischen Quelle und Target zu $4.4 \cdot 10^5 \text{ /s/cm}^2$. Die Neutronenenergieverteilung wurde von Guarrini *et al.* übernommen, ihr Mittelwert beträgt circa 4.5 MeV [124]. Ein Nachteil radioaktiver Neutronenquellen ist deren Gammaemission, die zum Gammahintergrund beitragen, siehe zum Beispiel [129]. Diese Gammaemissionen werden hier zunächst nicht berücksichtigt, es wird davon ausgegangen, dass die Neutronenquelle entsprechend mit Blei und anderen geeigneten Materialien abgeschirmt ist.

3.1.2 Spaltmaterial-Target

Für die analytischen Abschätzungen werden zwei Uran-Targets und ein Plutonium-Target simuliert, deren wichtigste Eigenschaften in Tabelle 3.2 zusammengefasst sind. Das erste Uran-Target ist dem von Chichester *et al.* verwendeten nachempfunden, um Vergleiche zwischen den Ergebnissen der analytischen Abschätzungen und

¹Siehe Datenblatt der verwendeten Americium-241/Beryllium Quelle in Abbildung A.2 im Anhang, persönliche Kommunikation mit Christoph Lierse von Gostomski, 2015

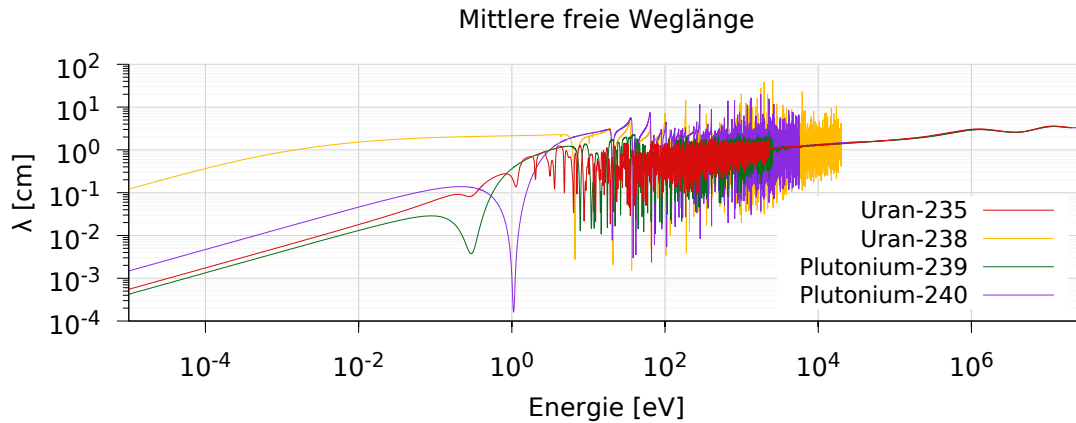


Abbildung 3.2 – Mittlere freie Weglänge der Neutronen in den vier Isotopen Uran-235, Uran-238, Plutonium-239 und Plutonium-240, in Abhängigkeit ihrer Energie.

den publizierten Messergebnissen zu ermöglichen. Es hat eine Masse von (610 ± 1) Gramm, eine Querschnittsoberfläche in Richtung der Neutronenquelle und des Detektors von $(104 \pm 1) \text{ cm}^2$ und einen Uran-235 Anreicherungsgrad von (90 ± 1) Gewichtsprozent (oder *wt %*, wobei *wt* eine Abkürzung für das englische Wort *weight* ist). Die anderen beiden Spaltmaterial-Targets haben generische Massen, um Extrapolationen zu vereinfachen, wobei die mittleren freien Weglängen der Neutronen in den Targets berücksichtigt werden müssen. Beide Targets haben eine Masse von (1 ± 0.01) Gramm und eine Querschnittsoberfläche von $(1 \pm 0.01) \text{ cm}^2$. Das hochangereicherte Uran hat eine Uran-235 Anreicherung von (90 ± 0.01) Gewichtsprozent, das waffenwürdige Plutonium einen Plutonium-239 Anteil von (95 ± 0.01) Gewichtsprozent.

Die mittlere freie Weglänge in einem Medium ist die Distanz, nach der ein Teilchen im Durchschnitt mit dem Medium reagiert. Daraus folgt, dass nach einer mittleren freien Weglänge exakt $1/e$ Teilchen noch nicht mit dem Medium reagiert haben. Sie ergibt sich aus der exponentiellen Abnahme der Intensität $I(x)$ in Abhängigkeit der durchlaufenen Distanz x im Medium, des totalen Wechselwirkungsquerschnitts der Teilchen im Medium σ_{tot} und der Teilchendichte ρ_t des Mediums:

$$I(x) = I_0 \cdot e^{-\sigma_{tot} \cdot \rho_t \cdot x} \xleftrightarrow{\text{zu}} \lambda = \frac{1}{\sigma_{tot} \cdot \rho_t} . \quad (3.1)$$

Der Kehrwert der mittleren freien Weglänge wird auch als linearer Schwächungskoeffizient μ bezeichnet, die Teilchendichte ergibt sich mit der Avogadro-Konstante N_A aus der Molaren Masse M und der Massendichte ρ_m des Mediums:

$$\mu = \frac{1}{\lambda} = \sigma_{tot} \cdot \rho_t = \sigma_{tot} \cdot \frac{N_A \cdot \rho_m}{M} . \quad (3.2)$$

Aufgrund der hohen Dichte und Wechselwirkungsquerschnitte der Spaltmaterialien Uran und Plutonium haben die Neutronen nur kleine freie mittlere Weglängen in den Targets, siehe Tabelle 3.3. Die Wechselwirkungsquerschnitte wurden der

Neutronenenergie	Mittlere freie Weglängen [cm]			
	Uran-235	Uran-238	Plutonium-239	Plutonium-240
25 meV	0.03	1.72	0.02	0.07
2.5 MeV	2.73	2.70	2.70	2.70
4.5 MeV	2.64	2.63	2.61	2.62

Tabelle 3.3 – Mittlere freie Weglänge von Neutronen in den vier Isotopen Uran-235, Uran-238, Plutonium-239 und Plutonium-240 bei den mittleren Neutronenenergien der drei untersuchten Neutronenquellen.

ENDF/B-VII.1 Bibliothek entnommen [112]. Abbildung 3.2 zeigt die mittleren freien Weglängen für die vier Isotope in Abhängigkeit der Neutronenenergie von 10 μeV bis 30 MeV. Während die mittleren freien Weglängen von Neutronen in den vier Isotopen für Energien unterhalb von 20 keV deutlich variieren, nähern sie sich darüber sehr stark an.

Die Dicke des Targets ergibt sich für die beiden generischen Spaltmaterial-Targets HEU und WGPu mit den Massedichten $\rho_{m,U} = 19.16 \text{ g/cm}^3$ und $\rho_{m,Pu} = 19.816 \text{ g/cm}^3$, den Querschnittsoberflächen $A = (1 \pm 0.01) \text{ cm}^2$ und den Massen $m = (1 \pm 0.01) \text{ g}$ gerundet jeweils zu $d = \frac{m}{\rho_m \cdot A} = (0.05 \pm 0.001) \text{ cm}$. Das HEU-Target von Chichester *et al.* hat eine Dicke von 0.3 cm [103]. Sie sind damit dicker als die mittleren freien Weglängen von thermischen Neutronen in den Isotopen Uran-235 und Plutonium-239. Für thermische Neutronen in Uran-238 und schnelle Neutronen in allen vier Isotopen sind die mittleren freien Weglängen deutlich größer als die Dicke der Targets, vergleiche Tabelle 3.3.

Die kleinen mittleren freien Weglängen bedeuten, dass ein Target mit einer entsprechenden Dicke nicht homogen bestrahlt wird, sondern, dass die Intensität der Bestrahlung in den tieferen Schichten deutlich nachlässt.²

Die hier untersuchten Targets sind homogen, davon kann aber in der Abrüstungsverifikation im Allgemeinen nicht ausgegangen werden, da die Beschaffenheit des Spaltmaterials in der Regel unbekannt ist und/oder verifiziert werden soll.

3.1.3 Gammadetektor

Für die analytischen Abschätzungen wird davon ausgegangen, dass sich kein abschirmendes Material zwischen dem Ort der Gammaemission (im Target) und dem Detektor befindet. Dies gilt auch für Selbstabschirmung. Die Vernachlässigung der Selbstabschirmung stellt keine signifikante Einschränkung dar, da der Großteil der Reaktionen nahe der Oberfläche stattfindet. Es wird ein Gammadetektor aus hochreinem Germanium mit einer relativen Effizienz von 50 % angenommen.³ Dies entspricht einem handelsüblichem Gammadetektor, der in einem gut ausgerüsteten Gammaskopielabor in der Regel vorhanden ist. Es kann also davon aus-

²Auf die Reaktionsraten und deren Verhältnisse haben die kleinen mittleren freien Weglängen bei homogenen Targets keinen, beziehungsweise sogar einen positiven Einfluss, da so annähernd alle Neutronen auch in relativ dünnen Targets reagieren.

³Relativ zu einem 3" \times 3" Natrium-Iodid Detektor, bei einer Energie von 1332 keV in 25 cm Abstand von einer Punktquelle [130].

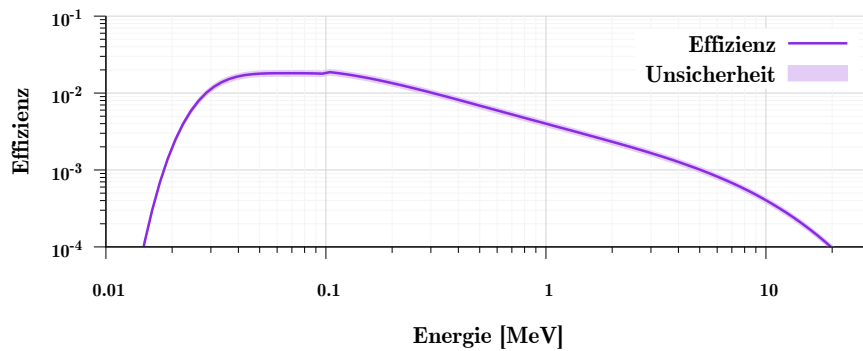


Abbildung 3.3 – Effizienz eines 50 % NaI Gammadetektors mit einem Kristall aus hoch-reinem Germanium. Doppellogarithmisch aufgetragen in Abhängigkeit von der Energie für eine Punktquelle in 10 Zentimeter Abstand mit 10 % Unsicherheit. Kalibrierkurve von Helmut Fischer, Universität Bremen.

gegangen werden, dass bei Experimenten zumindest auf ein vergleichbares Modell zurückgegriffen werden kann. Langfristig, also im Rahmen eventueller zukünftiger Abrüstungsabkommen, ist anzunehmen, dass effizientere Detektoren zur Verfügung stehen. Für den beschriebenen Detektor mit einer Punktquelle in 10 Zentimeter Abstand wurde von Helmut Fischer, Universität Bremen die folgende Kalibrierkurve für den natürlichen Logarithmus der Effizienz ϵ in Abhängigkeit der Gamma-Energie E übernommen:⁴

$$\ln(\epsilon) = \begin{cases} -294.7 + 273.70 \cdot \ln(E) - 96.6700 \cdot \ln^2(E) \\ \quad + 15.180 \cdot \ln^3(E) - 0.89420 \cdot \ln^4(E) & , E \leq 100 \text{keV} \\ -28.50 + 16.260 \cdot \ln(E) - 3.83000 \cdot \ln^2(E) \\ \quad + 0.3817 \cdot \ln^3(E) - 0.01423 \cdot \ln^4(E) & , E > 100 \text{keV} \end{cases} \quad (3.3)$$

Die relative Unsicherheit der Effizienz wird für alle Energien als 10 % angenommen. Die Effizienzkurve mit Unsicherheit ist in Abbildung 3.3 doppellogarithmisch dargestellt.

3.2 Methodik

3.2.1 Neutronenflussdichte

Die Neutronenflussdichte beschreibt die Anzahl an Neutronen, die pro Zeitintervall durch ein bestimmtes Flächenelement fließen. Hier wird sie wenn möglich pro Quadratzentimeter pro Sekunde auf der Querschnittsoberfläche des Spaltmaterial-Targets in Richtung der Neutronenquelle angegeben. Soweit die entsprechenden Daten vorliegen wird die totale Flussdichte mit der normalisierten Neutronenenergieverteilung der Quelle multipliziert, dies ist zum Beispiel bei dem Deuterium-Deuterium

⁴persönliche Kommunikation, 2013

Neutronengenerator der Fall. Stehen nicht alle dafür notwendigen Informationen zur Verfügung, wird alternativ die thermische Äquivalenzflussdichte verwendet, wie zum Beispiel beim Forschungsreaktor München-II. In der in Tabelle 3.1 referenzierten Publikation findet sich zwar eine Neutronenenergieverteilung, auf diese wird aber in den hier präsentierten analytischen Abschätzungen nicht zurückgegriffen, da sie nicht das gesamte Energiespektrum abdeckt [119]. Die relative Unsicherheit für die Neutronenflussdichte wird pauschal mit 1 % angenommen. Die relative Unsicherheit der Neutronenenergieverteilung (letzte Spalte in Tabelle 3.1) ergibt sich vor allem daraus, dass die publizierten Spektren manuell in digitale Daten konvertiert werden mussten und ist deshalb mit 10 % bis 50 % deutlich höher.

Die thermische Äquivalenzneutronenflussdichte wird mit der *thin sample approximation* (auf Deutsch ungefähr „Dünne-Probe-Näherung“) hergeleitet [109]:

$$\int_0^{\infty} \sigma_{\gamma}(E_n) \cdot \Phi(E_n) dE_n = \sigma_{\gamma,0} \cdot \Phi_0, \quad (3.4)$$

wobei $\sigma_{\gamma}(E_n)$ der neutronenenergieabhängige spezifische Gammaemissionswechselwirkungsquerschnitt ist, $\Phi(E_n)$ die energieabhängige Neutronenflussdichte und $\sigma_{\gamma,0}$ der spezifische Gammaemissionswechselwirkungsquerschnitt für thermische Neutronen. Die thermische Äquivalenzneutronenflussdichte Φ_0 ist darüber definiert, dass sie die Energieabhängigkeit des Wechselwirkungsquerschnitts „absorbiert“. Dies ist für niedrige Neutronenenergien gut möglich, da die Wechselwirkungsquerschnitte sich antiproportional zur Neutronenenergie verhalten, also mit steigender Neutronenenergie gleichförmig abfallen. Da die Neutronenenergie proportional zur Neutronengeschwindigkeit v ist, spricht man von der $1/v$ Abhängigkeit der Wechselwirkungsquerschnitte. Mit der Geschwindigkeit der thermischen Neutronen v_0 ergibt sich die thermische Äquivalenzneutronenflussdichte:

$$\Phi_0 = \int_0^{\infty} \frac{v_0}{v} \cdot \Phi(v) dv. \quad (3.5)$$

Diese Herangehensweise ist nur gerechtfertigt, wenn Abweichungen von der $1/v$ Abhängigkeit der Wechselwirkungsquerschnitte für die jeweilige Materie korrigiert werden. 1967 wurde von Lemmel und Westcott der sogenannte g Faktor eingeführt [131], der später nach Westcott benannt wurde. Die Westcott g Faktoren für Plutonium-239, Plutonium-240, Uran-235 und Uran-238 sind in Tabelle 3.4 aufgeführt, wobei Westcott $g_{n,\gamma}$ den Westcott Faktor für Neutroneneinfangsreaktionen bezeichnet, Westcott $g_{n,f}$ den für neutroneninduzierte Spaltungen und Westcott g_{tot} den gesamten für alle Reaktionen.

3.2.2 Neutronenwechselwirkungen

In diesem Abschnitt werden die Wechselwirkungsreaktionen der Neutronen im Spaltmaterial-Target so beschrieben, wie sie in den analytischen Abschätzungen berücksichtigt werden. Die dafür wichtigste Wechselwirkung ist der Neutroneneinfang. Des Weiteren werden die wichtigsten damit konkurrierenden Neutronenwechselwirkungen beschrieben, die bei der Untersuchung der Neutroneneinfangsreaktionen einen unerwünschten Untergrund bewirken. Die mit Abstand stärkste Konkurrenzreaktion

	Westcott $g_{n,\gamma}$	Westcott $g_{n,f}$	Westcott g_{tot}
Pu-239	1.142	1.058	1.080
Pu-240	1.027	1.045	1.028
U-235	0.991	0.977	0.982
U-238	1.003	1.002	1.100

Tabelle 3.4 – Westcott g Faktoren für Plutonium-239, Plutonium-240, Uran-235 und Uran-238 für Neutroneneinfänge und induzierte Spaltungen [132, 133].

ist die induzierte Spaltung, deren Wechselwirkungsquerschnitte für Plutonium-239 für alle Energien größer sind, als die des Neutroneneinfangs - abgesehen von dem Resonanzbereich, über den solche Aussagen schwerlich getroffen werden können. Die bei der induzierten Spaltung emittierte Gammastrahlung kann in die prompte, also direkt beim Spaltungsprozess emittierte, und in die verzögerte Gammastrahlung, die von den Spaltprodukten emittiert wird, unterteilt werden. Die Unterscheidung zwischen prompten und verzögerten Gammas ist für Spaltungen anders definiert als beim Neutroneneinfang, bei dem alle Gammas direkt nach dem Einfang emittiert werden, allerdings abhängig von ihrer Energie verschieden schnell. Die hoch-energetischen Neutroneneinfangsgammas werden als prompte Neutroneneinfangsgammas bezeichnet und werden nur relativ geringfügig schneller frei als die verzögerten. Bei induzierten Spaltungen dagegen erstrecken sich die prompten und verzögerten Spaltgammas jeweils über ein großes Energiespektrum und prompte Spaltgammas werden innerhalb von ungefähr 10^{-14} bis 10^{-3} Sekunden emittiert, während die verzögerten Spaltgammas erst danach und unendlich lange auftreten können [114].

Ein zusätzlicher Untergrund ergibt sich durch das Kontinuum an Gammas, das beim Neutroneneinfang selbst frei wird, vergleiche Abschnitt 2.2. Alle anderen Wechselwirkungsreaktionen wie zum Beispiel Neutronenstreuung werden vernachlässigt. Diese Annahme ist für niedrige Neutronenenergien unter 1 keV ohne Beschränkung der Allgemeinheit korrekt, darüber aber mit steigender Neutronenenergie immer weniger, da dann immer mehr dieser Prozesse auftreten, vergleiche beispielsweise Abbildung 2.4. Auch Spontanspaltungen werden nicht berücksichtigt, da sie bei hohen Neutronenflussdichten gegenüber den induzierten Spaltungen vernachlässigt werden können.

3.2.2.1 Strahlender Neutroneneinfang

Die für den strahlenden Neutroneneinfang verwendeten Wechselwirkungsquerschnitte sind der ENDF/B-VII.1 Bibliothek [112] entnommen. In dieser Bibliothek gibt es für einige Neutronenenergien mehrere identische Einträge, solche Duplikate wurden manuell gelöscht, um eine eindeutige Bibliothek für die *Mathematica* Software bereitstellen zu können. Während die absoluten Wechselwirkungsquerschnitte konsistent sind, variieren die in den verschiedenen Publikationen und Datenbanken veröffentlichten Intensitäten für spezifische Gamma-Übergänge um mehrere Größenordnungen wie in Abschnitt 1.8 beschrieben. Für die analytischen Abschätzungen werden die von Chrien *et al.* publizierten Gamma-Intensitäten für Plutonium-239

verwendet, da dort 27 Übergänge mit Intensitäten publiziert wurden [86], während in der CapGam Datenbank nur 11 Übergänge oberhalb von 2 MeV veröffentlicht sind und davon nur 7 mit Intensitäten [105]. Die Gamma-Intensitäten für die Isotope Plutonium-240, Uran-235 und Uran-238 werden aus der CapGam Datenbank übernommen [105], um eine gute Vergleichbarkeit zu gewährleisten. Die Gamma-Intensitäten für Plutonium-240 wurden augenscheinlich von White *et al.* in CapGam übernommen, der dieselben Zahlenwerte angibt, allerdings in willkürlichen („arbitrary“) Einheiten [134].

Da für die analytischen Abschätzungen nur die hoch-energetische Gammastrahlung von Interesse ist, werden nur Gammaemissionen über 2.5 MeV betrachtet. Diese entsprechen weitestgehend der prompten Gammastrahlung aus Neutroneneinfängen, da die angeregten Kerne die überschüssige Energie möglichst schnell abgeben und deshalb zunächst hoch-energetische Übergänge bevorzugt werden. In Tabelle 3.5 findet sich eine Übersicht ausgewählter Gamma-Intensitäten nach Neutroneneinfängen in den vier für die analytischen Abschätzungen verwendeten Isotopen. Eine vollständige Auflistung aller für die analytischen Abschätzungen verwendeten Gamma-Linien finden sich im Anhang in Tabelle B.1 für Plutonium-239, in Tabelle B.2 für Plutonium-240, in Tabelle B.3 für Uran-235 und in Tabelle B.4 für Uran-238.

Die niedrigste insgesamt betrachtete Gammalinie hat eine Energie von $E_\gamma = 3.0$ MeV und wird von Uran-238 emittiert, die Höchste von Plutonium-239 ($E_\gamma = 6.5$ MeV). Die Anzahl der betrachteten Gammalinien für die vier betrachteten Isotope ist 27 (Plutonium-239), 30 (Plutonium-240), 13 (Uran-235) und 68 (Uran-238). Sie erstrecken sich über Energiebereiche mit den Breiten 1.4 MeV (Plutonium-240), 1.8 MeV (Uran-238), 1.9 MeV (Uran-235) und 2.1 MeV (Plutonium-239). Die absoluten Intensitäten der Gammalinien pro 1000 Neutroneneinfänge sind sehr niedrig. Sie liegen zwischen $3.79 \cdot 10^{-3}$ (Uran-238) und 130 (Plutonium-240). Die Summe der absoluten Intensitäten pro 1000 Neutroneneinfänge aller betrachteten diskreten Gammalinien ergibt sich für die vier betrachteten Isotope zu 30.6 (Plutonium-239), 937 (Plutonium-240), 8.49 (Uran-235) und 40.9 (Uran-238). Bei 1000 thermischen Neutroneneinfängen in Plutonium-239 und Plutonium-240 werden jeweils insgesamt 3780 Gammas emittiert [115], die Diskrepanz zu den oben genannten Zahlen um zwei Größenordnungen erklärt sich durch die Überlappung der meisten Gammalinien zu einem Kontinuum. Die oben genannten Summen der Intensitäten berücksichtigen nur die messbaren Abweichungen von diesem kontinuierlichen Neutroneneinfangshintergrund.⁵

Alle diese Gamma-Energien und -Intensitäten gelten für den thermischen Neutroneneinfang. Es ist zu erwarten, dass sich die spezifischen Neutroneneinfangwechselwirkungsquerschnitte mit einer Änderung der Energie des einfallenden Neutrons ändern. Ottmar *et al.* konnten in einem Experiment mit 2 keV Neutronen eine Verschiebung von im Durchschnitt 1.8 keV gegenüber dem thermischen Neutroneneinfang feststellen, die sie auf genau diesen Effekt zurückführen [90]. Entsprechend wäre für 2.5 MeV Neutronen aus einem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator das obere Ende des Gamma-Energiespektrums für Plutonium-239 bei circa 9 MeV zu erwarten, mit $E_{\gamma,max} = E_B + E_n$ und $E_B = 6.5$ MeV. Da kaum publizierte Messdaten,

⁵Der Neutroneneinfangshintergrund wird in Abschnitt 2.2 ausführlicher behandelt, mit einer vereinfachten Darstellung in Abbildung 2.5.

Isotop	E_γ keV	Δ_E keV	I_γ / $10^3(n, \gamma)$	Δ_I / $10^3(n, \gamma)$	$\Delta_{I,rel}$ %	
Pu-239	4404.80	0.70	0.839156	0.247193	29.46	niedrigste
	5044.40	0.30	1.582770	0.185634	11.73	5. stärkste
	5093.83	0.20	2.062346	0.181084	8.78	4. stärkste
	5403.90	0.70	0.300287	0.072100	24.01	schwächste
	5573.74	0.13	2.939133	0.184520	6.28	2. stärkste
	5594.88	0.16	2.372830	0.173297	7.30	3. stärkste
	5934.80	0.20	3.023056	0.238662	7.89	1. stärkste
	6532.80	0.50	0.445648	0.127328	28.57	höchste
Pu-240	3630.52	0.03	24.005190	6.010973	25.04	niedrigste
	3883.89	0.04	130.002400	7.228590	5.56	1. stärkste
	3944.81	0.04	126.999180	7.223541	5.69	2. stärkste
	4151.53	0.02	66.009130	3.131406	4.74	3. stärkste
	4457.42	0.03	23.408660	1.336009	5.71	15. stärkste
	4472.29	0.04	37.005430	3.045121	8.23	8. stärkste
	4486.19	0.19	4.792810	0.495874	10.35	schwächste
	5079.80	0.02	27.604940	1.444485	5.23	höchste
U-235	4647.10	0.60	0.400200	0.411860	102.91	niedrigste
	4885.50	0.60	0.899000	0.810004	90.10	2. stärkste
	4973.70	0.60	0.899000	0.810004	90.10	2. stärkste
	5493.20	1.40	0.197200	0.170780	86.60	schwächste
	6395.50	0.20	3.201600	2.836142	88.59	1. stärkste
	6499.50	0.50	0.197200	0.170780	86.60	höchste
U-238	2998.60	0.70	1.067200	0.658203	61.68	niedrigste
	3406.90	0.80	0.003790	0.003790	100.00	schwächste
	3583.10	0.20	3.880200	2.002674	51.61	2. stärkste
	4060.36	0.15	13.229800	6.794240	51.36	1. stärkste
	4612.50	0.20	0.290000	0.149604	51.59	26. stärkste
	4660.70	0.20	0.307400	0.158107	51.43	27. stärkste
4806.40	1.50	0.017400	0.008730	50.17	höchste	

Tabelle 3.5 – Ausgewählte für die analytischen Abschätzungen verwendete Gamma-Intensitäten I_γ pro 1000 Neutroneneinfänge in Abhängigkeit der Gamma-Energie E_γ (in keV) mit den jeweiligen absoluten Unsicherheiten Δ_I (pro 1000 Neutroneneinfänge) und Δ_E (in keV), sowie der relativen Unsicherheit $\Delta_{I,rel}$ für die Gamma-Intensität. Aufgeführt sind jeweils die Übergänge bei der niedrigsten und höchsten Energie, sowie der schwächste (grau) und die stärksten Übergänge. Da die Übergänge für die Isotope mit einer geraden Anzahl von Neutronen (Plutonium-240 und Uran-238) energetisch deutlich niedriger liegen, sind für diese noch die stärksten Übergänge im Energiebereich über 4.4 MeV aufgeführt. Daten übernommen aus, beziehungsweise berechnet mit Chrien *et al.* (Plutonium-239) und CapGam (Plutonium-240, Uran-235 und Uran-238) [86, 105].

keine spezifischen Wechselwirkungsquerschnitte und keine umfassende Beschreibung dieses physikalischen Effekts vorliegen, insbesondere nicht für schnelle Neutronen, ist es im Rahmen dieser analytischen Abschätzungen nicht möglich die höhere kinetische Energie der schnellen Neutronen aus der Fusion von Deuterium mit Deuterium zu berücksichtigen. Um überhaupt irgendeine -wenn auch schwache- Aussage treffen zu können, wird diese Verschiebung deshalb in den analytischen Abschätzungen zunächst nicht berücksichtigt, beziehungsweise wird von einer bereits erfolgten Korrektur ausgegangen. Diese Annahme muss bei der Auswertung der Ergebnisse der analytischen Abschätzungen beachtet werden, da die Detektoreffizienz bei der maximalen Gamma-Energie von 9 MeV deutlich niedriger ist als bei 6.5 MeV, vergleiche Abbildung 3.3. Der prompter Spaltuntergrund fällt über 8.5 MeV sehr stark ab, vergleiche Abbildung 3.4. Im Folgenden wird das Potential der Methode ausschließlich unter der Grundannahme aufgezeigt, dass weiterhin diskrete Neutroneneinfangslinien existieren, deren spezifische Intensitäten in der gleichen Größenordnung liegen. Dies betrifft nicht den thermalisierten Deuterium-Deuterium Neutronengenerator, der in den Abschnitten 3.3.2.5 und 3.3.2.6 vorgestellt wird. Auch im Experiment wurden die Neutronen des Deuterium-Deuterium Neutronengenerators thermalisiert, vergleiche Abschnitt 4.1.

Die Gammalinien werden im Detektor nicht nur mit einer Effizienz kleiner eingeschätzt, sondern bedingt durch den Detektionsprozess und die beteiligte Elektronik auch deutlich breiter als die intrinsische Linienbreite. Diese Linienverbreiterung hängt von der Art und den Spezifikationen des Detektors ab. Hochreine Germanium (HPGe) Detektoren haben eine relativ geringe Linienverbreiterung (also hohe Auflösung) im Vergleich zu anderen weitverbreiteten Gammadetektoren, in der Regel einhergehend mit einer niedrigeren Effizienz. Für die analytischen Abschätzungen wird konservativ eine gaußförmige Linienverbreiterung mit einer energieunabhängigen Halbwertsbreite (Englisch: *full width at half maximum* FWHM) von 4 keV angenommen:

$$I_{Peak,i}(E_\gamma) = \frac{I_{\gamma,i}(E_{\gamma,i})}{\sigma \cdot \sqrt{2\pi}} \cdot e^{-\frac{1}{2} \left(\frac{E_\gamma - E_{\gamma,i}}{\sigma} \right)^2}, \quad (3.6)$$

$$\text{mit } \sigma = \frac{4 \text{ keV}}{2\sqrt{2 \ln 2}}. \quad (3.7)$$

$I_{Peak,i}(E_\gamma)$ bezeichnet die Intensitätsverteilung des Peaks i in Abhängigkeit von der Gamma-Energie E_γ . Sie ergibt sich aus der gaußverbreiterten diskreten Gamma-Intensität $I_{\gamma,i}$ bei der Gamma-Energie $E_{\gamma,i}$, mit der sich aus der Halbwertsbreite 4 keV ergebenden Standardabweichung σ . Die Berücksichtigung nur der Gaußverbreiterung und nicht der anderen physikalischen Effekte im Detektorkristall, wie der Compton-Streuung und Paarbildung, entspricht der Applikation eines zusätzlichen idealen Szintillators, in dem alle den Germaniumkristall verlassenden Gammas detektiert werden. Das Gammaskpektrum $I_{n,\gamma}(E_\gamma)$ für die prompter Gammastrahlung aus einem Neutroneneinfang erhält man aus der Summe über die Anzahl i der Peaks: $\sum_i I_{n,\gamma-Peak,i}(E_\gamma)$. Da die mittleren freien Weglängen im Spaltmaterial nicht immer deutlich höher sind, als deren Dicken, muss die Neutronenflussdichte darüber hinaus in Abhängigkeit der Eindringtiefe betrachtet werden, vergleiche Abschnitt 3.1.2. Unter Berücksichtigung dieser von der Energie der emittierten Gammastrahlung abhän-

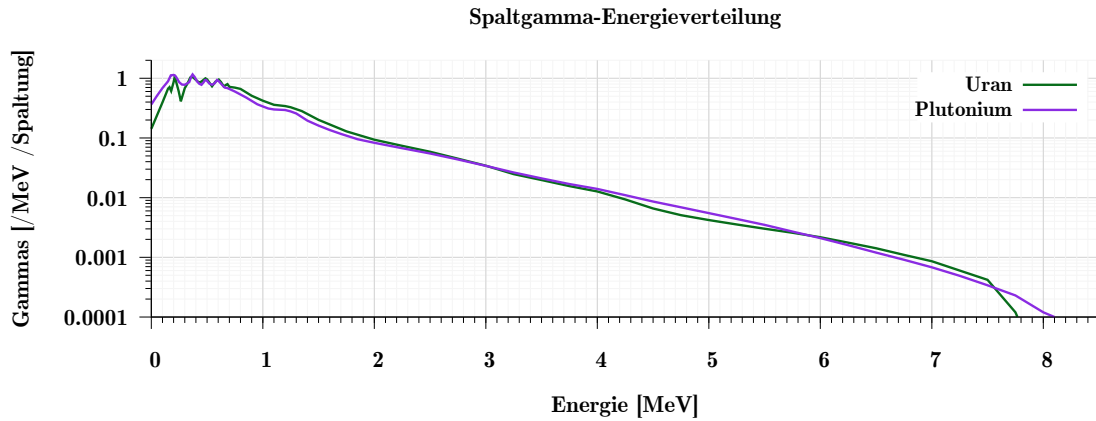


Abbildung 3.4 – Für die analytischen Abschätzungen verwendete Energieverteilung der Gammastrahlung aus durch thermische Neutronen induzierter Spaltung in Uran und Plutonium. Normiert auf jeweils ein Gammaquant pro Spaltung, Daten für Uran-235 und Uran-238 von [112, 135] und für Plutonium-239 und Plutonium-240 von Hunter und Stewart [115].

gigen Gammaintensität $I_{n,\gamma}(E_\gamma)$, der Detektoreffizienz $\epsilon(E_\gamma)$, der Querschnittsfläche des Targets im Neutronenstrahl F_q , der initialen Neutronenflussdichte $\Phi_0(E_n)$ und des absoluten Neutroneneinfangwechselwirkungsquerschnitts $\sigma_{n,\gamma}(E_n)$ ergibt sich die Zählrate für die prompte Gammastrahlung aus Neutroneneinfangsreaktionen:

$$R_{n,\gamma}(E_\gamma) = I_{n,\gamma}(E_\gamma) \cdot \epsilon(E_\gamma) \cdot \int_{E_n=0}^{\infty} \sigma_{tot}(E_n) \cdot \rho_t \int_{x=0}^d e^{-\sigma_{tot}(E_n) \cdot \rho_t \cdot x} dx \cdot F_q \cdot \Phi_0(E_n) \frac{\sigma_{n,\gamma}(E_n)}{\sigma_{tot}(E_n)} dE_n. \quad (3.8)$$

Im *Mathematica* Skript werden zunächst unabhängige Berechnung für die zwei Spaltmaterial Isotope gemacht, weshalb sich dort $I_{n,\gamma}(E_\gamma)$ auf die Gammaintensität und $\sigma_{n,\gamma}(E_n)$ auf den Neutroneneinfangwechselwirkungsquerschnitt des jeweiligen Isotops bezieht. Der totale Neutronenwechselwirkungsquerschnitt $\sigma_{tot}(E_n)$ und die Teilchendichte ρ_t beziehen sich dagegen immer auf das Target als Ganzes.

3.2.2.2 Prompte Spaltgammas

Anstatt eingefangen zu werden, können die Neutronen das Spaltmaterial-Target-Atom auch spalten. Auch bei dieser Reaktion wird Gammastrahlung emittiert; vor allem nieder-, aber auch hoch-energetische. Direkt nach der Emission der prompten Neutronen innerhalb von ungefähr 10^{-18} bis 10^{-14} Sekunden nach der Spaltung werden innerhalb von circa 10^{-14} bis 10^{-3} Sekunden die prompten Gammas emittiert [114]. Die Energieverteilung der prompten Gammastrahlung aus durch thermische Neutronen induzierten Spaltungen in Uran und Plutonium ist in Abbildung 3.4 dargestellt. Die Verteilung für Spaltgammas aus Plutonium-239 und Plutonium-240 wurde 1972 von Hunter und Stewart publiziert [115], die für Uran-235 und Uran-238

wurde aus der ENDF/B-VII.1 Bibliothek [112] entnommen und sind konsistent mit der Energieverteilung, die Verbinski, Weber und Sund 1973 publiziert haben [135]. Der Großteil der Photonen hat eine Energie von unter 1 MeV.

Analog zu dem Vorgehen bei den Neutroneneinfangsgammas werden die Wechselwirkungsquerschnitte für die induzierte Spaltung der ENDF/B-VII.1 Bibliothek [112] entnommen und doppelte Einträge manuell gelöscht. Im Durchschnitt führt jede durch thermische Neutronen induzierte Spaltung in Plutonium-239 und Plutonium-240 zur Emission von 8.095 Photonen [115], genauer gesagt gilt diese Multiplizität für alle Neutronenenergien unter 1.09 MeV. In der ENDF/B-VII.1 Bibliothek wird die Photonen-Multiplizität pro Plutonium-239 Spaltung für 10^{-5} eV mit 7.7833 angegeben.

Für Uran-235 ermitteln Oberstedt *et al.* in einer Reihe von Messungen die Gamma-Multiplizität zu 8.19 ± 0.11 [136]. Vorhergehende Messungen und Berechnungen hatten niedrigere Multiplizitäten von 6.51 ± 0.30 [137] bis 8.05 [138] ergeben. Lebois *et al.* haben gezeigt, dass die Gamma-Multiplizität für Uran-238 mit der von Uran-235 mit einem Verhältnis von 1.008 ± 0.090 übereinstimmt [139], ähnlich wie bei Plutonium-239 und Plutonium-240 [115]. Die ermittelte Gamma-Multiplizität hängt unter anderem sehr stark von dem Schwellenwert (*threshold*) ab, ab dem die Gammastrahlung überhaupt gemessen werden kann. Dieser Schwellenwert kann bei modernen Detektoren deutlich niedriger liegen, als bei älteren Detektoren. Mit einem vergleichsweise hohen Schwellenwert der Gammaenergie von 450 keV kamen Oberstedt *et al.* zum Beispiel im Jahr 2013 nur auf eine deutlich geringere Gamma-Multiplizität von 4.7 ± 0.6 [140].

Während die Arbeiten von Oberstedt *et al.* 2014 darauf hindeuten, dass die prompten Spaltgamma-Multiplizitäten für Uran-238 eventuell mit zunehmender Neutronen-Energie leicht ansteigen könnten [141], sind die prompten Spaltgamma-Multiplizitäten für Plutonium-240 (und Uran-234) laut der ganz aktuellen Daten von Rose *et al.* 2017 auch für höhere Neutronenenergien in etwa konstant [142].

Die von Oberstedt *et al.* 2013 und von Rose *et al.* 2017 für Uran-235 und Uran-238 ermittelten Multiplizitäten stimmen innerhalb der Fehler mit der für Plutonium-239 und Plutonium-240 überein [115, 136, 142]. Sie sind geringfügig höher, während frühere Publikationen zu geringeren Multiplizitäten kamen [135, 137, 138, 140]. Für die analytische Abschätzung der prompten Spaltgammas wird für alle vier betrachteten Isotope eine neutronenenergieunabhängige Gamma-Multiplizität von 8.095 angenommen.

Spontane Spaltungen und induzierte Spaltungen durch Spaltneutronen werden bei der analytischen Abschätzung nicht berücksichtigt, da ihre Anzahl um Größenordnungen kleiner ist als die induzierten Spaltungen durch die eingestrahlteten Neutronen aus den Neutronenquellen. Die Zählrate für den Untergrund aus prompten Spaltgammas wird analog zu der für die prompte Gammastrahlung aus Neutroneneinfangsreaktionen berechnet:

$$R_f(E_\gamma) = 8.095 \cdot I_{n,f}(E_\gamma) \cdot \epsilon(E_\gamma) \cdot \int_{E_n=0}^{\infty} \sigma_{tot}(E_n) \cdot \rho_t \int_{x=0}^d e^{-\sigma_{tot}(E_n) \cdot \rho_t \cdot x} dx \cdot F_q \cdot \Phi_0(E_n) \frac{\sigma_{n,f}(E_n)}{\sigma_{tot}(E_n)} dE_n. \quad (3.9)$$

Hierbei ist 8.095 die konstante Gamma-Multiplizität, $I_{n,f}(E_\gamma)$ das Gammaskpektrum der prompten Gammastrahlung aus induzierten Spaltungen (siehe Abbildung 3.4), $\epsilon(E_\gamma)$ die Detektoreffizienz, $\sigma_{tot}(E_n)$ der totale Wechselwirkungsquerschnitt der Neutronen im Medium, ρ_t die Teilchendichte, d die Dicke des Targets, $\Phi_0(E_n)$ die initiale Neutronenflussdichte und $\sigma_{n,f}(E_n)$ der absolute Wechselwirkungsquerschnitt des Mediums für induzierte Spaltungen. Auch für das Signal durch spontane Spaltung werden im *Mathematica* Skript zunächst unabhängige Berechnung für die zwei Spaltmaterial Isotope gemacht. Entsprechend beziehen sich dort $I_{n,\gamma}(E_\gamma)$ auf die Gammaintensität und $\sigma_{n,f}(E_n)$ auf den Neutroneneinfangwechselwirkungsquerschnitt des jeweiligen Isotops. Der totale Neutronenwechselwirkungsquerschnitt $\sigma_{tot}(E_n)$ und die Teilchendichte ρ_t beziehen sich dagegen immer auf das Target als Ganzes.

3.2.2.3 Verzögerte Spaltgammas

Bei jeder Spaltung wird zusätzlich zu der im vorhergehenden Abschnitt diskutierten prompten Gammastrahlung auch verzögerte Gammastrahlung emittiert. Verzögert bedeutet hier, dass sie nicht direkt bei der Spaltung frei wird, sondern beim weiteren Zerfall der Spaltprodukte. Dieser kann je nach Spaltprodukt sehr schnell, ab einer Millisekunde nach der Spaltung, aber auch nahezu beliebig lange später auftreten [114]. Die Anzahl der verzögerten Spaltgammas ist von dem spaltenden Material und den weiteren Zerfällen abhängig, die wiederum statistisch verteilt sind. Die verzögerten Spaltgammas sind nicht in Abbildung 3.4 inkludiert. Die Spaltausbeuten für die Spaltprodukte sind bekannt, genauso wie die Fraktionierung beim weiteren Zerfall, die genaue Bestimmung eines Spektrums für ein Spalt-Isotop ist aber sehr umfangreich. In der ENDF Datenbank sind keine verzögerten Spaltgamma-Daten aufgeführt, anders als bei den in Abbildung 3.4 dargestellten Daten für die prompten Gammas. Deshalb werden für die analytischen Abschätzungen die verzögerten Spaltgammas von den prompten Spaltgammas abgeleitet. Dabei wird auf zwei von Matussek *et al.* publizierte Gammaskpektren zurückgegriffen, die jeweils in ihre verschiedenen Anteile entfaltet sind: Gammastrahlung aus Neutroneneinfang, aus Spaltung (prompt), aus Spaltung (verzögert) und von dem aktiven Hintergrund [88]. Das Spektrum für Plutoniumdioxid mit 91.2 % Plutonium-239 ist in Abbildung 3.5 zu sehen, in derselben Publikation von Matussek *et al.* ist ein ähnliches Spektrum für Urandioxid mit 19.85 % Uran-235 Anreicherung vorhanden [88], siehe Abbildung 3.6. Die Energieskalen beinhalten 4 MeV bis 6 MeV für Plutonium und 4.2 MeV bis 6.5 MeV für Uran. Matussek *et al.* haben diese Messungen mit einem Germanium-Lithium Detektor an einem Forschungsreaktor mit einer Neutronenflussdichte von $2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ am Ort des Targets durchgeführt; die Targets waren 91.4 Milligramm Plutonium-Oxid mit 91.2 % Plutonium-239 Anteil und 8.0 % Plutonium-240 Anteil,

sowie 682.6 Gramm Uran-Oxid mit 19.85 % Uran-235 Anteil und 80.15 % Uran-238 Anteil [88].

Diese entfaltenen Spektren wurden mit der Software *Engauge Digitizer* [143] digitalisiert, um das Verhältnis zwischen den verzögerten und den prompten Spaltgammas von Matussek *et al.* zu bestimmen. Für Energien ober- und unterhalb der publizierten Spektren werden diese linear extrapoliert. Durch Multiplikation mit der analytischen Abschätzung der prompten Spaltgammas (siehe Abschnitt 3.2.2.2) ergibt sich eine Abschätzung für die verzögerten Spaltgammas:

$$R_{f,del}(E_\gamma) = \frac{R_{f,del,M}(E_\gamma)}{R_{f,M}(E_\gamma)} \cdot R_f(E_\gamma), \quad (3.10)$$

mit dem von Matussek *et al.* gemessenen verzögerten Spaltspektrum $R_{f,del,M}(E_\gamma)$, dem von Matussek *et al.* gemessenen prompten Spaltspektrum $R_{f,M}(E_\gamma)$ und dem analytisch abgeschätzten prompten Spaltspektrum $R_f(E_\gamma)$.

Für die Digitalisierung der Matussek *et al.* Spektren wird konservativ jeweils eine relative Unsicherheit von 10 % angenommen und die Unsicherheit der verzögerten Gammastrahlung durch Fehlerfortpflanzung bestimmt. Sie ist durch das Einzeichnen der Kurven und die Ableitung von den prompten Spaltgammas entsprechend größer:

$$\Delta R_{del}(E_\gamma) = \frac{R_{del,M}(E_\gamma)}{R_{f,M}(E_\gamma)} \cdot \sqrt{\Delta R_f(E_\gamma)^2 + R_f(E_\gamma)^2 \left(\frac{\Delta R_{del,M}(E_\gamma)^2}{R_{del,M}(E_\gamma)^2} + \frac{\Delta R_{f,M}(E_\gamma)^2}{R_{f,M}(E_\gamma)^2} \right)}, \quad (3.11)$$

wobei die ΔR_i jeweils die absoluten Unsicherheiten angeben. Die Unsicherheit im extrapolierten Energiebereich ist entsprechend größer.

3.2.2.4 Kontinuierliche Gammastrahlung aus Neutroneneinfang

Die meiste Gammastrahlung, die bei einem strahlenden Neutroneneinfang emittiert wird, bildet ein Kontinuum, siehe Abschnitt 3.2.2.1. Gesicherte Daten zur Energieverteilung dieses Kontinuums sind kaum publiziert. Die Informationen befinden sich aber in den entfaltenen Gammaspectren von Matussek *et al.* [88]. Die in Anti-Koinzidenz mit Neutronen gemessene Gammastrahlung stammt aus Neutroneneinfängen und ist eine Superposition aus den messbaren Gammalinien und dem Kontinuum. Subtrahiert man also die eindeutigen Peaks von der obersten Kurve in Abbildung 3.5 und glättet die Kurve so erhält man eine Abschätzung des Kontinuums für den vorhandenen Energiebereich. Analog zum Vorgehen in Abschnitt 3.2.2.3 wird dieses Spektrum auf das der von Matussek *et al.* gemessenen prompten Gammastrahlung aus Spaltung normiert. Damit ergibt sich durch Multiplikation mit der analytisch abgeschätzten prompten Gammastrahlung aus Spaltung die Abschätzung des Kontinuums aus Neutroneneinfängen:

$$R_{kon}(E_\gamma) = \frac{R_{kon,M}(E_\gamma)}{R_{f,M}(E_\gamma)} \cdot R_f(E_\gamma), \quad (3.12)$$

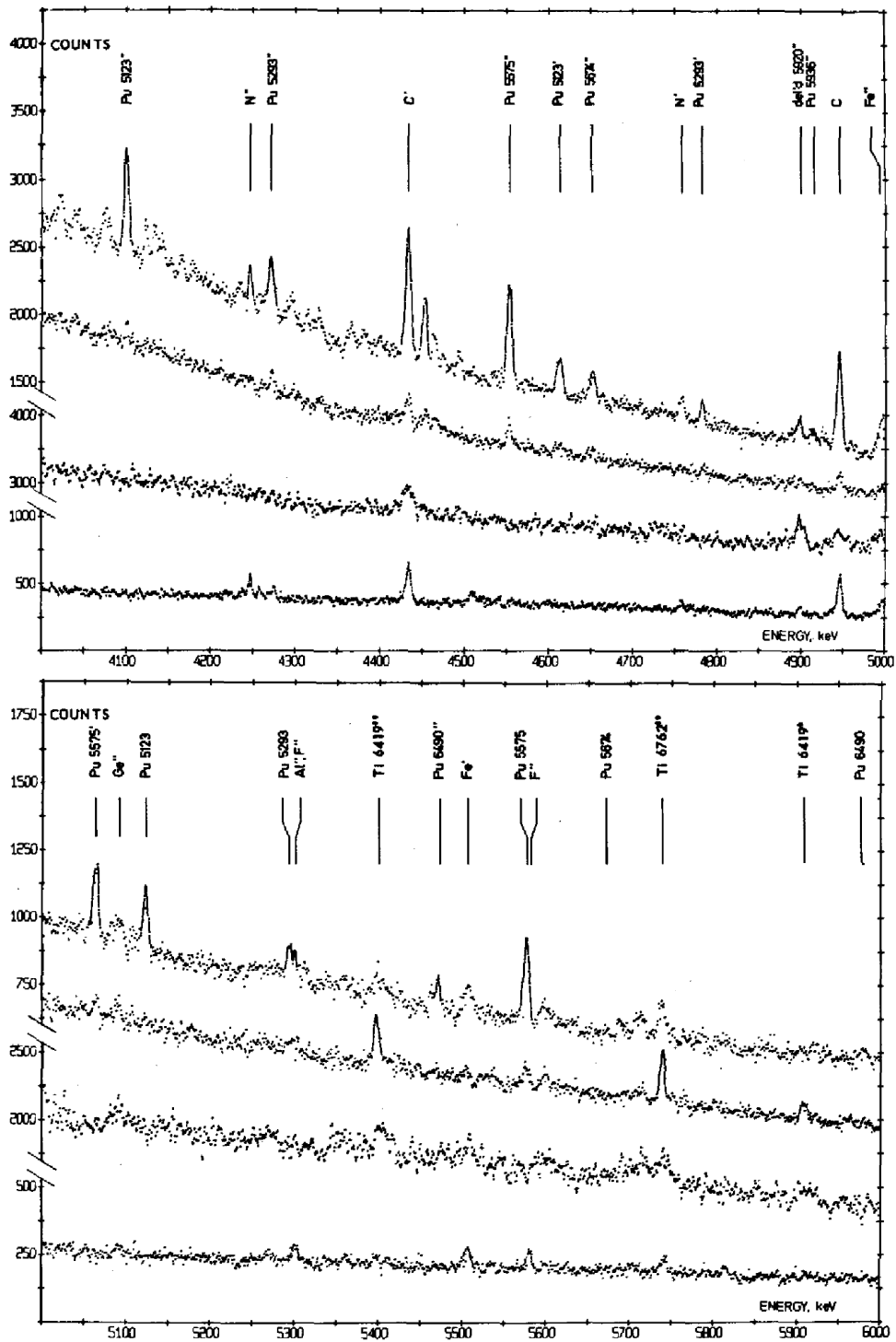


Abbildung 3.5 – Von Matussek *et al.* gemessenes und entfaltetes neutroneninduziertes Gammapektrum von Plutoniumdioxid mit 91.2% Plutonium-239. Die oberste Kurve ist die Gammastrahlung in Anti-Koinzidenz mit Neutronen, also aus Neutroneneinfang. Die zweitoberste Kurve zeigt die Gammastrahlung in Koinzidenz mit Neutronen, also prompte Spaltgammas. Die zweitunterste Kurve ist die deutlich nach dem Neutronenbeschuss gemessene, also verzögerte Gammastrahlung aus Spaltungen, wobei die y-Achse dort unterbrochen ist und die Spaltgammas höhere Zählraten aufweisen als die aus Neutroneneinfängen. Die unterste Kurve ist der aktive Untergrund ohne Spaltmaterial-Target. Abbildung aus [88].

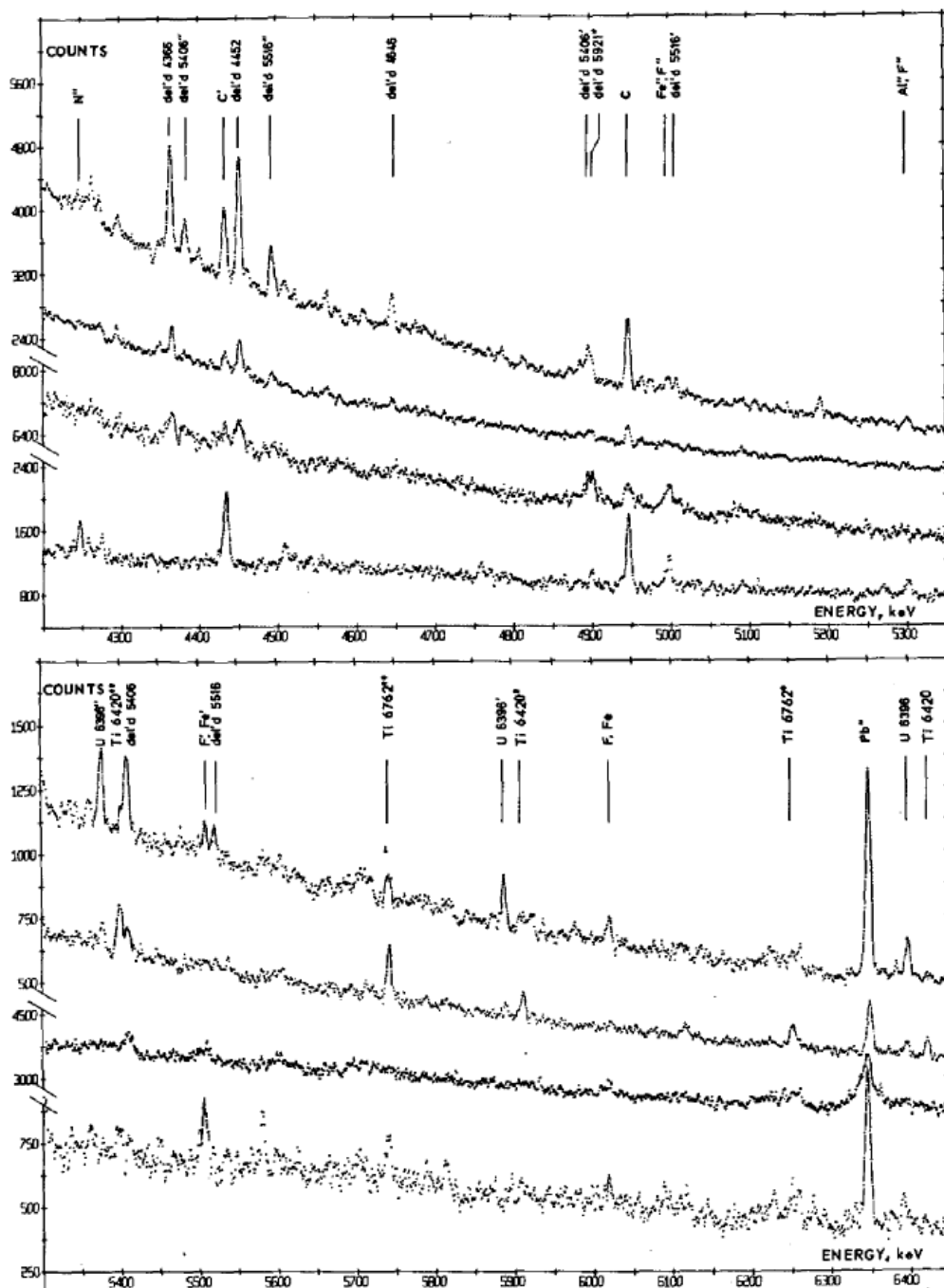


Abbildung 3.6 – Von Matussek *et al.* gemessenes und entfaltetes neutroneninduziertes Gammасpektrum von Urandioxid mit 19.85% Uran-235 Anreicherung und 80.15% Uran-238. Die oberste Kurve zeigt die Gammas in Anti-Koinzidenz mit Neutronen, also aus Neutroneneinfang. Die zweitoberste Kurve sind die Gammas in Koinzidenz mit Neutronen, also prompte Spaltgammas. Die zweitunterste Kurve ist die deutlich nach dem Neutronenbeschuss gemessene, also verzögerte Gammastrahlung aus Spaltungen, wobei die y-Achse dort unterbrochen ist und die Spaltgammas deutlich höhere Zählraten aufweisen als die aus Neutroneneinfängen. Die unterste Kurve ist der aktive Untergrund ohne Spaltmaterial-Target. Abbildung aus [88].

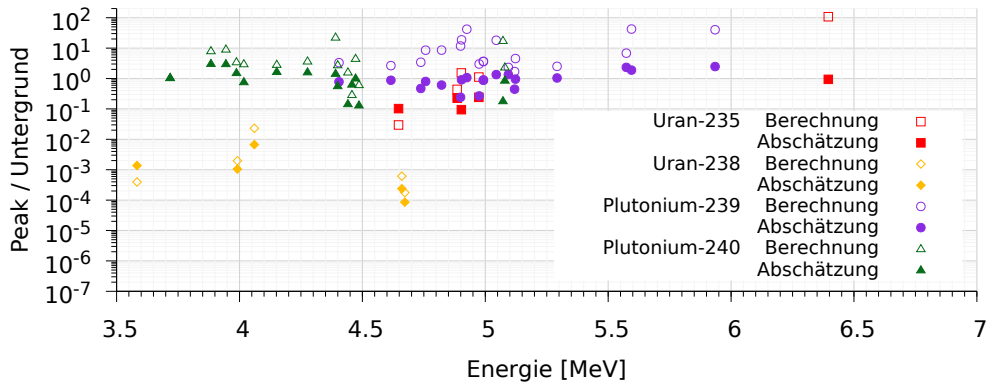


Abbildung 3.7 – Evaluierung der Peak-zu-Untergrund-Verhältnisse für verzögerte Spaltgammas aus thermischen Neutroneneinfängen in Uran-235 (rote Quadrate), Uran-238 (orange Rauten), Plutonium-239 (violette Kreise) und Plutonium-240 (grüne Triangel). Es werden die Verhältnisse der analytischen Abschätzungen mit dem Computerprogramm *Mathematica* (gefüllt) mit den manuell berechneten Verhältnissen (offen) verglichen.

mit den von Matussek *et al.* gemessenen Gammakontinuum aus Neutroneneinfang $R_{kon,M}(E_\gamma)$, dem von Matussek *et al.* gemessenen prompten Spaltspektrum $R_{f,M}(E_\gamma)$ und dem analytisch abgeschätzten prompten Spaltspektrum $R_f(E_\gamma)$.

Die Unsicherheit ergibt sich mit Fehlerfortpflanzung analog zu der der verzögerten Gammas zu:

$$\Delta R_{kon}(E_\gamma) = \frac{R_{kon,M}(E_\gamma)}{R_{f,M}(E_\gamma)} \cdot \sqrt{\Delta R_f(E_\gamma)^2 + R_f(E_\gamma)^2 \left(\frac{\Delta R_{kon,M}(E_\gamma)^2}{R_{kon,M}(E_\gamma)^2} + \frac{\Delta R_{f,M}(E_\gamma)^2}{R_{f,M}(E_\gamma)^2} \right)}, \quad (3.13)$$

wobei die ΔR_i wiederum jeweils die absoluten Unsicherheiten bezeichnen und die Unsicherheit im extrapolierten Energiebereich entsprechend größer ist.

3.2.2.5 Validierung

In diesem Unterabschnitt wird evaluiert, wie gut die Näherung für die verzögerten Spaltgammas und die kontinuierliche Gammastrahlung aus Neutroneneinfang über das von Matussek *et al.* gemessene entfaltete Spektrum ist. Die Evaluierung wird exemplarisch für den Fall der verzögerten Spaltgammas aus thermischen Neutroneneinfängen vollzogen. Dazu wird der Hintergrund durch spontane und induzierte Spaltungen berechnet. Die entsprechenden Gamma-Ausbeuten wurden für die spontanen und neutroneninduzierten prompten Spaltungen von England *et al.* [144] übernommen und für die verzögerten Spaltgammas von Firestone [145]. Der so berechnete kumulierte Hintergrund im Abstand von bis zu 10 keV von den bekannten Neutroneneinfangsgammapeaks wird dann mit den Intensitäten der Peaks verglichen. In Abbildung 3.7 ist dieses Peak-zu-Hintergrund-Verhältnis über die Energie

in MeV für Uran-235, Uran-238, Plutonium-239 und Plutonium-240 aufgetragen. Diese manuell berechneten Verhältnisse sind mit offenen Symbolen dargestellt, die entsprechenden Verhältnisse aus den analytischen Abschätzungen mit dem Computerprogramm *Mathematica* mit gefüllten Symbolen. Die Korrelation der berechneten und analytisch abgeschätzten Peak-zu-Hintergrund-Verhältnisse ist deutlich zu erkennen, wobei die abgeschätzten Werte fast immer deutlich niedriger sind als die berechneten. Der Hintergrund für die verzögerten Spaltgammas wird also in den analytischen Abschätzungen tendenziell überschätzt, was auf eine konservative Natur der getroffenen Annahmen hindeutet.

Bei der Interpretation der Ergebnisse muss stets berücksichtigt werden, dass der passive und aktive Hintergrund nicht in die analytischen Abschätzungen mit eingeflossen sind, da beide stark von den gegebenen Umständen bei den jeweiligen Messungen abhängen und nicht allgemeingültig bewertet werden können.

Neutronenquelle	Flussdichte $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$	Target	Zusatz
Forschungsreaktor München-II	$2.7 \cdot 10^{10}$	1 g Uran	- PAK *
		1 g Plutonium	- Blei
Deuterium-Deuterium Generator	$2 \cdot 10^6$	610 g Uran	- PAK *
		1 g Plutonium	- PAK *
thermalisierter D-D ENG	$5.6 \cdot 10^5$	1 g Plutonium	- PAK *
Americium-241/Beryllium	$4.4 \cdot 10^5$	1 g Uran	- PAK *
		1 g Plutonium	- PAK *
Thermalisiertes Am-241/Be	$1.2 \cdot 10^5$	1 g Plutonium	- PAK *

* n-Pulse und n- γ -Anti-Koinzidenz

Tabelle 3.6 – Übersicht der durchgeführten analytischen Abschätzungen mit den angenommenen Neutronenquellen und Targets.

3.3 Ergebnisse der analytischen Abschätzungen

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der analytischen Abschätzungen für die drei Neutronenquellen vorgestellt. Dabei wird auch auf zusätzliche Optionen wie weitere Abschwächung von Gammastrahlung durch externe Abschirmung und die Thermalisierung schneller Neutronen durch einen ergänzenden Moderator eingegangen. Abschließend wird noch kurz eine weitere Anwendung des erstellten *Mathematica* Skriptes erläutert. Tabelle 3.6 zeigt eine Übersicht der durchgeführten analytischen Abschätzungen, die weiteren Spezifikation der Neutronenquellen sind in Tabelle 3.1 aufgeführt, die der Targets in Tabelle 3.2.

Die Ergebnisse werden insbesondere in Graphen dargestellt, vergleiche zum Beispiel Abbildung 3.8. Neben dem analytisch abgeschätzten (n, γ) -Spektrum des jeweiligen Targets (oberste Kurve, grün) werden die Beiträge der verschiedenen physikalischen Effekte dargestellt. Den größten Beitrag stellt die verzögerte Gammastrahlung aus induzierten Spaltungen dar (gelb), dann folgen das Kontinuum aus Neutroneneinfängen (blau) und die prompte Gammastrahlung aus induzierten Spaltungen (rot). Dabei ist der Beitrag durch verzögerte Gammastrahlung aus induzierten Spaltungen für Uran deutlich größer, als für Plutonium. Die schattierten Bereiche geben die jeweiligen Unsicherheiten an. Alle berücksichtigten Neutroneneinfangslinien sind durch schattierte Punkte und Fehlerbalken markiert, auch wenn die Peaks sich nicht vom Untergrund abheben. Alle (n, γ) -Peaks über 4.81 MeV, sowie der Peak bei 4.65 MeV stammen von Uran-235, alle anderen (n, γ) -Peaks von Uran-238 (also insbesondere alle unter 4.64 MeV), vergleiche Tabellen B.3 und

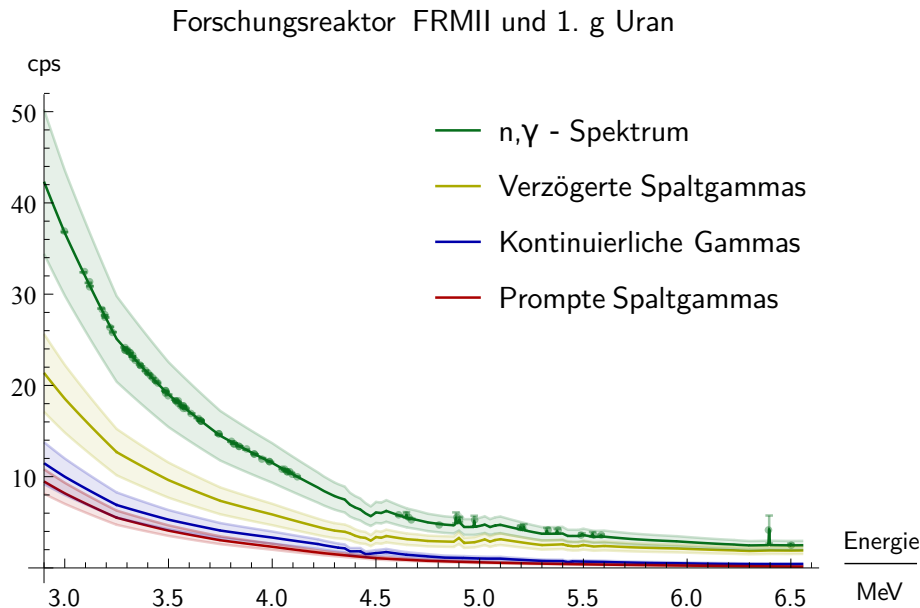


Abbildung 3.8 – Analytisch abgeschätztes (n, γ) -Spektrum des 1 g Uran-Targets (90 % Uran-235 Anreicherung), das mit thermischen Neutronen aus dem FRM-II Forschungsreaktor bestrahlt wird ($2.7 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen am Ort des Targets).

B.4 im Anhang. Alle (n, γ) -Peaks über 5.08 MeV stammen von Plutonium-239, alle (n, γ) -Peaks unter 4.40 MeV von Plutonium-240, vergleiche Abbildung 2.6 oder Tabellen B.1 und B.2 im Anhang. Bei der Applikation eines *Choppers* und einer n - γ -Anti-Koinzidenzelektronik entfallen die Beiträge der Verzögerten und Prompten Spaltgammas und machen damit die zusätzliche Darstellung der Kontinuierliche Gammas unnötig, da diese damit den einzigen Untergrund darstellen.

3.3.1 Forschungsreaktor München-II

Dieser Unterabschnitt ist wiederum in mehrere Teile gegliedert. Zunächst wird auf die Ergebnisse der analytischen Abschätzungen für das Uran-Target eingegangen, wobei auch der Einsatz eines *Choppers* und einer n - γ -Anti-Koinzidenz diskutiert wird. Anschließend wird das Plutonium-Target betrachtet, sowie die Verwendung externer Blei-Abschirmung.

3.3.1.1 Forschungsreaktor München-II und Uran

Abbildung 3.8 zeigt das analytisch abgeschätzte (n, γ) -Spektrum des HEU-Targets mit einer Masse von $(1 \pm 0.01) \text{ g}$, einem Uran-235 Anteil von $(90 \pm 0.01) \%$ und einem Uran-238 Anteil von $(10 \pm 0.01) \%$, bestrahlt mit $2.7 \cdot 10^{10} / \text{cm}^2 / \text{s}$ Neutronen am Ort des Targets aus dem FRM-II Forschungsreaktor. Das Target hat im Neutronenstrahl eine Oberfläche von $(1 \pm 0.01) \text{ cm}^2$ und eine Dicke von $(0.05 \pm 0.0005) \text{ cm}$.

Nur der Uran-235 (n, γ) -Peak bei 6.4 MeV hebt sich sichtbar von dem Untergrund ab. Alle anderen Peaks sind kaum erkennbar. Dieses Ergebnis ist konsistent mit dem von Matussek *et al.* [88] publizierten Spektrum, in dem auch nur der Uran-

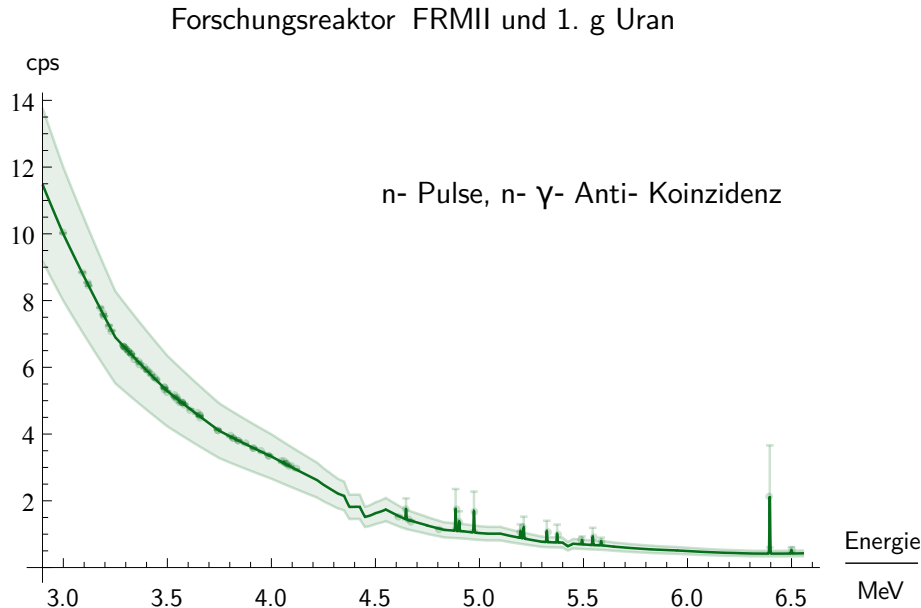


Abbildung 3.9 – Uran-Target mit 1 g Masse und 90 % Uran-235 Anreicherung; die $2.7 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen aus dem FRM-II Forschungsreaktor werden mit einem *Chopper* gepulst; Ereignisse im Detektor nur beim Auftreffen der Neutronenpulse auf das Target und nur in Anti-Koinzidenz zu Neutronen (Spaltevents) aufgezeichnet.

235 (n, γ)-Peak bei 6.4 MeV identifiziert werden konnte [88], vergleiche Abbildung 3.6. Ursachen hierfür sind die niedrigen spezifischen Übergangswahrscheinlichkeiten sowie der hohe Untergrund durch die prompten und insbesondere die verzögerten Spaltgammas. Eine Ermittlung des Anreicherungsgrads ist unter diesen Umständen nicht möglich. Die Zählraten liegen für den betrachteten Gamma-Energiebereich in einer günstigen Größenordnung, es ist allerdings auch erkennbar, dass die Zählraten für niedrigere Gamma-Energien deutlich ansteigen und so zu erhöhten Totzeiten im Detektor führen können. Eine Unterdrückung dieser unerwünschten Gammastrahlung wird im Abschnitt 3.3.1.4 diskutiert.

3.3.1.2 *Chopper* und n- γ -Anti-Koinzidenz

Die Halbwertszeiten der Spaltfragmente sind in der Regel deutlich höher, als die Zeitskalen, auf denen die induzierte Spaltung und der Neutroneneinfang ablaufen. Dadurch ist es möglich, zumindest einen Teil der prompten und verzögerten Spaltgammas zu unterdrücken, wenn man den Zeitpunkt der Reaktionen kennt. Der Neutronenstrahl eines Forschungsreaktors kann mit einem *Chopper* gepulst werden. Der *Chopper* ist eine Drehscheibe aus einem Neutronen-absorbierenden Material mit einem offenen Schlitz. Wird der *Chopper* außerhalb der Strahlachse in den Neutronenstrahl eingebracht, blockiert er diesen zu jedem Zeitpunkt, in dem sich der Schlitz nicht im Neutronenstrahl befindet. So wird dieser mit der Drehfrequenz des *Choppers* gepulst. Dabei hängen die Pulslänge und der Pulsabstand von der Breite des Schlitzes und der Drehfrequenz des *Choppers* ab. In den analytischen Abschätzung wird der Einsatz eines *Choppers* durch die Subtraktion der verzögerten Spaltgammas erreicht, beziehungsweise durch deren nicht-Addition. Es wird also eine ideale Dis-

kriminierung angenommen und damit eine obere Grenze für den Effekt des *Choppers* ermittelt.

Ähnlich wird bei der Reduzierung des prompten Spaltgamma-Untergrundes vorgegangen. Da bei der Spaltung weitere Neutronen frei werden, beim Neutroneneinfang aber nicht, können diese Reaktionen durch die zusätzliche und zeitaufgelöste Messung von Neutronen distinguiert werden. Dabei werden nur Gamma-Ereignisse registriert, in denen die Gammas nicht mit Neutronen koinzidieren, man spricht deshalb von n - γ -Anti-Koinzidenzen. Für die analytischen Abschätzungen wird dies wiederum ideal implementiert, indem der prompte Spaltgamma-Untergrund subtrahiert, beziehungsweise gar nicht erst addiert wird.

Abbildung 3.9 zeigt die Applikation eines solchen idealen *Choppers* und einer idealen n - γ -Anti-Koinzidenz. Das Peak-zu-Untergrund Verhältnis ist deutlich besser und die Gesamt-Zählrate ist deutlich niedriger. Es sind zusätzliche Peaks deutlich zu erkennen, insbesondere zwei bei 4.89 MeV und 4.97 MeV. Diese Linien stammen alle von Uran-235, dessen berücksichtigten Linien nun sämtlich zumindest ansatzweise zu erkennen sind. Die stärkste Uran-238 Linie bei 4.06 MeV ist gerade so zu erkennen und kleiner als die Unsicherheit. Bei diesem Peak kommt erschwerend hinzu, dass das Spaltprodukt Rb-90 eine Zerfallslinie bei 4.062 MeV hat [145], die hier nur indirekt über den verzögerten Untergrund berücksichtigt wird. Die Problematik dieses Rb-90 Peaks bei der Berechnung des Uran Anreicherungsgrads wurde bereits von Molnár *et al.* diskutiert [100].

3.3.1.3 Forschungsreaktor München-II und Plutonium

Abbildung 3.10 zeigt das analytisch abgeschätzte (n, γ) -Spektrum des WGPu Targets mit einer Masse von (1 ± 0.01) g, einem Plutonium-239 Anteil von (95 ± 0.01) % und einem Plutonium-240 Anteil von (5 ± 0.01) %, bestrahlt mit $2.7 \cdot 10^{10}$ /cm² /s Neutronen am Ort des Targets aus dem FRM-II Forschungsreaktor. Das Target hat im Neutronenstrahl eine Oberfläche von (1 ± 0.01) cm² und eine Dicke von (0.05 ± 0.0005) cm.

Die meisten (n, γ) -Peaks sind klar zu erkennen und ermöglichen also prinzipiell die Messung des Isotopenverhältnisses. Hierfür ist insbesondere das Peak-Paar bei 5.094 MeV (Plutonium-239) und 5.089 MeV (Plutonium-240) geeignet, sowie alternativ der Plutonium-239 (n, γ) -Peak bei 4.616 MeV in Kombination mit dem Plutonium-240 (n, γ) -Peak bei 4.472 MeV oder dem Summenpeak bei 4.400 MeV (Plutonium-239) und 4.405 MeV (Plutonium-240). Dieses letztere Peak-Paar liegt so nah beieinander, dass die Peaks nicht gegeneinander aufgelöst werden.

Die Zählraten im betrachteten Gamma-Energiebereich verhalten sich ähnlich zu denen des Uran-Targets, sie liegen damit in einer günstigen Größenordnung. Allerdings steigen sie zu niedrigeren Gamma-Energien deutlich an und können so zu erhöhten Totzeiten führen. Deshalb wird im folgenden Abschnitt der Einsatz externer Blei-Abschirmung zur Reduktion der Zählraten insbesondere im nieder-energetischen Bereich diskutiert.

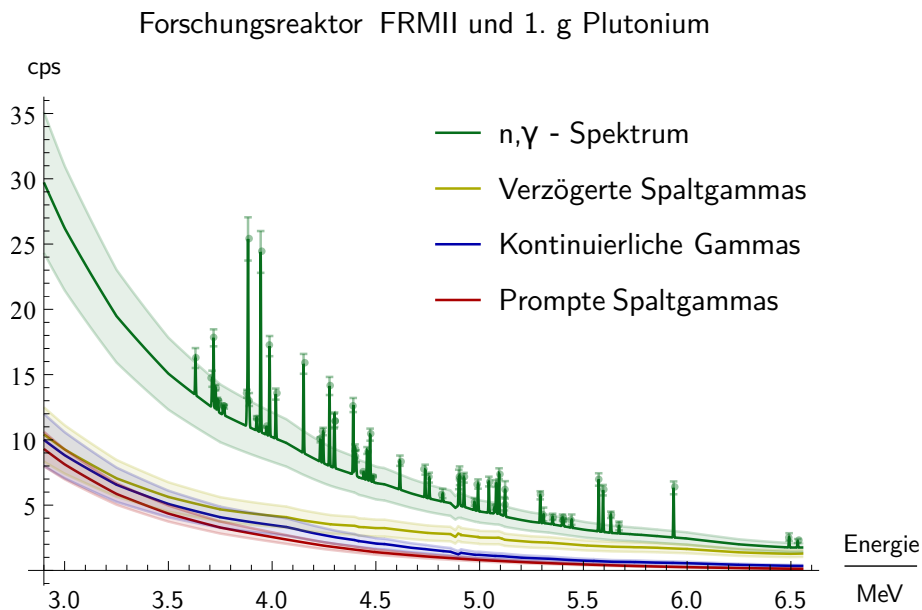


Abbildung 3.10 – Analytisch abgeschätztes (n, γ) -Spektrum des WGPu-Targets (1 g Masse, 95 % Plutonium-239), das mit thermischen Neutronen aus dem FRM-II Forschungsreaktor bestrahlt wird ($2.7 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen am Ort des Targets).

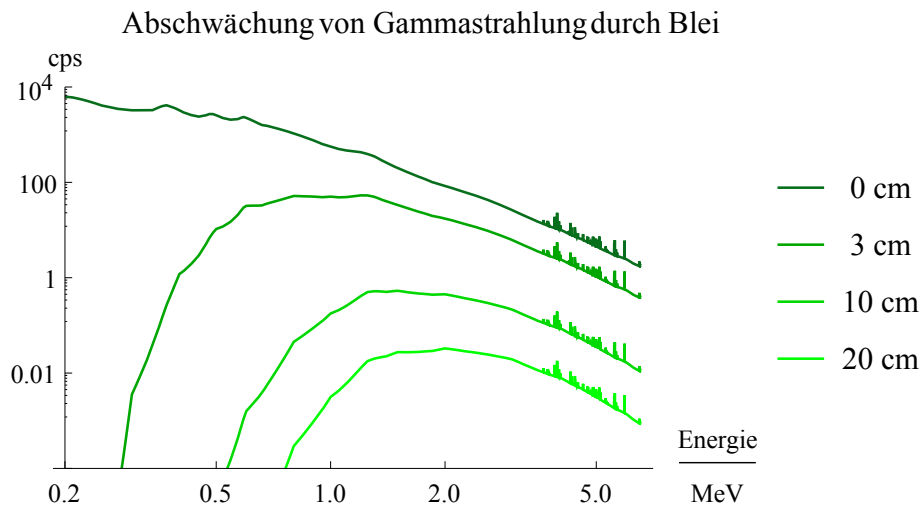


Abbildung 3.11 – Die oberste Kurve zeigt das Plutonium (n, γ) -Spektrum aus Abbildung 3.10 (95 % Plutonium-239, 5 % Plutonium-240, Forschungsreaktor München-II) in halblogarithmischer Darstellung über einen größeren Gamma-Energiebereich. Die unteren Kurven zeigen die Auswirkung von 3, 10 und 20 cm Blei-Abschirmung auf dieses Spektrum.

3.3.1.4 Blei-Abschirmung

Germanium-Detektoren müssen vor zu hohen Neutronenflussdichten geschützt werden, da diese den Germaniumkristall beschädigen können. Bei starker Gammastrahlung kann der Detektor nicht mehr alle Ereignisse aufzeichnen. Das führt dazu, dass die effektive Messzeit (*live time*) kürzer ist als die real verstrichene Zeit (*real time*) und entsprechend korrigiert werden muss. Bei sehr hohen Strahlenflussdichten kann es aber zu einer temporären und sogar dauerhaften Schädigung des Detektors kommen. Dem wird vorgebeugt, indem der Detektor durch eine geeignete Geometrie und externe Abschirmung vor zu hohen Strahlenflussdichten geschützt wird. In den analytischen Abschätzungen werden solche Effekte nicht berücksichtigt. Der Detektor hat keine Totzeit, beziehungsweise es wird angenommen, dass diese perfekt korrigiert werden kann.

In Abbildung 3.11 ist das Plutonium (n, γ)-Spektrum aus Abbildung 3.10 in halblogarithmischer Darstellung über einen größeren Gamma-Energiebereich dargestellt (oberste Kurve). Die Massenschwächungskoeffizienten wurden von Hubbel und Seltzer [146] übernommen. Mit zunehmender Dicke der Blei-Abschirmung wird die Gammastrahlung immer stärker abgeschirmt (untere Kurven). Die Effektivität der Abschirmung ist für die nieder-energetischen Gammas am größten, hat einen Tiefpunkt bei 4 MeV und sinkt dann verhältnismäßig leicht wieder ab. Für sehr dünne Abschirmungen ist das Absinken bei höheren Gamma-Energien kaum erkennbar; für dickere Abschirmungen wird es stärker. Für Energien unterhalb der von Matussek *et al.* [88] publizierten Gammaskpektren (4 MeV für Plutonium und 4.2 MeV für Uran) wurden der verzögerte Spaltgamma-Untergrund und der kontinuierliche Neutroneneinfangsgammauntergrund extrapoliert und es handelt sich deshalb um sehr grobe Abschätzungen. Die wichtigste Eigenschaft, das tendenzielle Ansteigen der Zählraten zu niedrigeren Energie ab 4 MeV in Abbildung 3.10 (oberste Kurve) ist plausibel, vergleiche zum Beispiel [103]. Das Peak-zu-Untergrund-Verhältnis im Energiebereich von 3 bis 6.5 MeV verändert sich kaum, da die Peaks und der umgebende Untergrund annähernd gleich stark abgeschirmt werden. Die Energieabhängigkeit der zusätzlichen Abschirmung muss aber gegebenenfalls bei der Bestimmung des Isotopenvektors berücksichtigt werden, wenn die betrachteten Peaks nicht sehr nah beieinander liegen. Da die absoluten Zählraten signifikant sinken, darf die Abschirmung nicht zu stark gewählt werden. Diese Ergebnisse lassen sich auf die anderen Neutronenquellen und auf die Uran-Targets übertragen.

Blei-Abschirmung kann ein effektives Instrument zur Abschwächung unerwünscht starker Gammastrahlung darstellen, welches das Peak-zu-Untergrund-Verhältnis kaum beeinflusst.

3.3.2 Deuterium-Deuterium Neutronengenerator

Dieser Unterabschnitt ist wiederum in mehrere Teile gegliedert, ähnlich wie der vorhergehende Unterabschnitt. Als erstes werden die analytischen Abschätzungen für den Neutronengenerator mit Deuterium-Deuterium Fusion und dem Uran-Target diskutiert; auch gepulst und mit $n\text{-}\gamma$ -Anti-Koinzidenz; danach die für den Deuterium-Deuterium Neutronengenerator mit dem Plutonium-Target. Abschließend wird die Thermalisierung der Neutronen aus dem Deuterium-Deuterium Generator durch

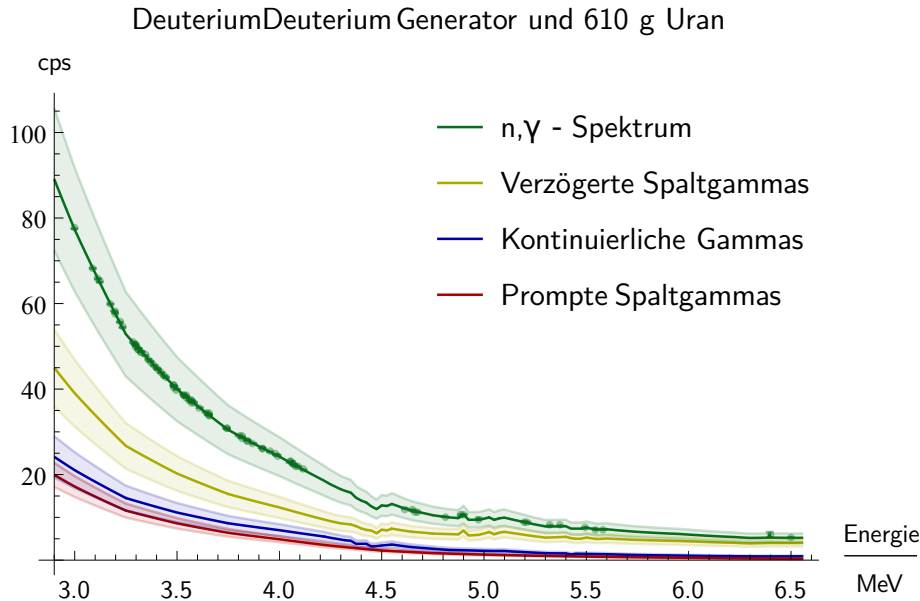


Abbildung 3.12 – Analytisch abgeschätztes (n, γ) -Spektrum des Uran-Targets nach Chichester *et al.* (610 g Masse, 90 % Uran-235 Anreicherung), das mit 2.5 MeV Neutronen aus dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator bestrahlt wird ($2 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen am Ort des Targets).

Moderation in Polyethylen simuliert.

Bei den hier vorgestellten Ergebnissen der analytischen Abschätzungen für nicht-thermische Neutronen wurden die Gammaenergien bereits um die zusätzlich zur Verfügung stehende Energie durch die höhere kinetische Energie der nicht-thermischen Neutronen korrigiert, vergleiche Abschnitt 3.2.2.1. Wie gehabt wird in den analytischen Abschätzungen auf die von Matussek *et al.* [88] publizierte Gammaspektren zurückgegriffen, um den Untergrund durch verzögerte Spaltgammas und das Neutroneneinfangskontinuum zu bestimmen.

3.3.2.1 Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und Uran

Abbildung 3.12 zeigt das analytisch abgeschätzte (n, γ) -Spektrum des Uran-Targets mit einer Masse von $(610 \pm 1) \text{ g}$, einem Uran-235 Anteil von $(90 \pm 1) \%$ und einem Uran-238 Anteil von $(10 \pm 1) \%$, bestrahlt mit $2 \cdot 10^6 / \text{cm}^2 / \text{s}$ Neutronen am Ort des Targets aus dem Neutronengenerator mit Deuterium-Deuterium Fusion. Das Target hat im Neutronenstrahl eine Oberfläche von $(104.04 \pm 1.04) \text{ cm}^2$ und eine Dicke von $(0.3 \pm 0.003) \text{ cm}$.

Es hebt sich kein einziger Peak deutlich vom Untergrund ab, nur der stärkste Gamma-Peak des thermischen Neutroneneinfangs in Uran-235 bei 6.396 MeV ist gerade so zu erkennen. Die Gesamtzählrate ist relativ hoch.

Dieser Messaufbau wurde bewusst analog zu dem von Chichester *et al.* [103] gewählt, wobei der Deuterium-Deuterium Neutronengenerator hier signifikant mehr Neutronen emittiert, vergleiche Unterabschnitt 3.1.1. Die Ergebnisse der analytischen Abschätzung stimmen mit den Messergebnissen von Chichester *et al.* darin überein, dass dieser Aufbau nicht geeignet ist, um Uran-235 oder Uran-238 zu iden-

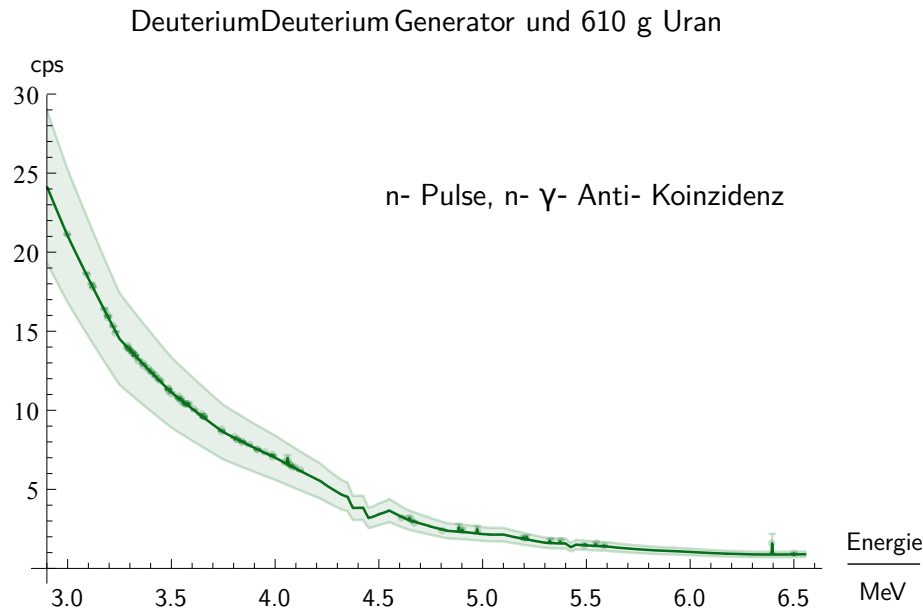


Abbildung 3.13 – Uran-Target mit 610 g Masse und 90 % Uran-235 Anreicherung; die $2 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen aus dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator werden in Pulsen erzeugt; Ereignisse im Detektor nur beim Auftreffen der Neutronenpulse auf das Target und nur in Anti-Koinzidenz zu Neutronen (Spaltevents) aufgezeichnet.

tifizieren und noch weniger um den Anreicherungsgrad festzustellen; auch nicht mit einem stärkeren Deuterium-Deuterium Neutronengenerator.

3.3.2.2 Gepulster Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und Uran mit n- γ -Anti-Koinzidenz

Abbildung 3.13 zeigt den Deuterium-Deuterium Neutronengenerator im gepulsten Betrieb mit einer idealen n- γ -Anti-Koinzidenz und Uran. Die Abschätzung für die Pulsung geschieht analog zur Applikation des oben beschriebenen idealen *Choppers* vergleiche Abschnitt 3.3.1.2. Das Spektrum entspricht dem in Abbildung 3.12 ohne den Gamma-Untergrund aus induzierten Spaltungen, weder dem aus verzögerter, noch dem aus prompter Gammastrahlung. Dadurch wird die Gesamtzählrate niedriger und die Peaks deutlicher. Gleichwohl ist der Uran-235(n_{th}, γ)-Peak bei 6.4 MeV immer noch sehr schwach. Die Ergebnisse der analytischen Abschätzungen deuten -bei allen gemachten Einschränkungen- darauf hin, dass dieser Versuchsaufbau nicht geeignet ist, Uran-238 zu identifizieren und nur schlecht dazu geeignet, Uran-235 zu identifizieren.

3.3.2.3 Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und Plutonium

Abbildung 3.14 zeigt das analytisch abgeschätzte (n, γ)-Spektrum des WGPu Targets mit einer Masse von (1 ± 0.01) g, einem Plutonium-239 Anteil von (95 ± 0.01) % und einem Plutonium-240 Anteil von (5 ± 0.01) %, bestrahlt mit $2 \cdot 10^6 / \text{cm}^2 / \text{s}$ Neutronen am Ort des Targets aus dem Neutronengenerator mit Deuterium-Deuterium

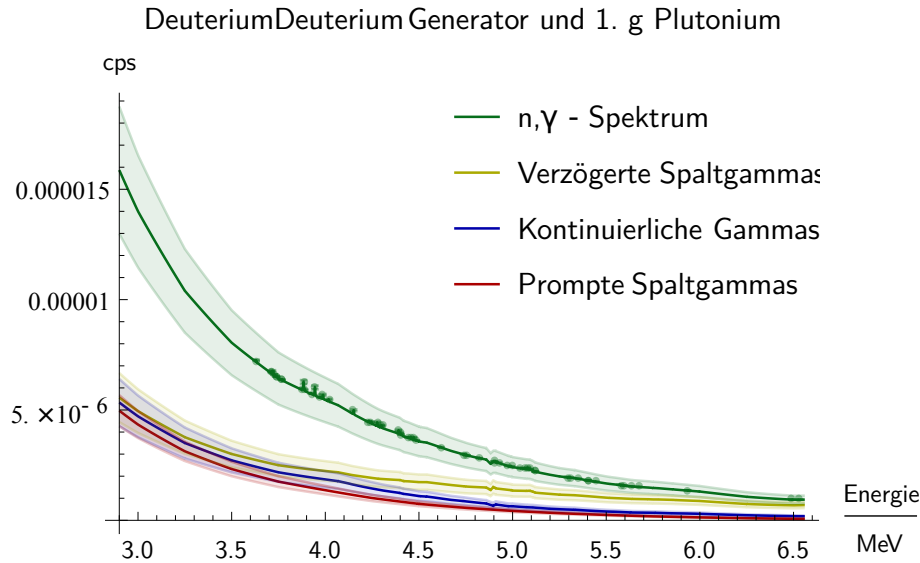


Abbildung 3.14 – Analytisch abgeschätztes (n, γ) -Spektrum des WGPu-Targets (1 g Masse, 95 % Plutonium-239 Anteil), das mit 2.5 MeV Neutronen aus dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator bestrahlt wird ($2 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen am Ort des Targets). 3.3.2.

Fusion. Das Target hat im Neutronenstrahl eine Oberfläche von $(1 \pm 0.01) \text{ cm}^2$ und eine Dicke von $(0.05 \pm 0.0005) \text{ cm}$.

Es ist kein einziger (n, γ) -Peak von Plutonium-239 zu erkennen, die Positionen der Peaks sind nur an Ihren Fehlerbalken zu erkennen. Dagegen sind einige Plutonium-240 (n, γ) -Peaks zumindest ansatzweise zu erkennen. Dies ergibt sich daraus, dass der Neutroneneinfangswirkungsquerschnitt in Plutonium-239 für hohe Neutronenenergien stärker abfällt, als für Plutonium-240, vergleiche Abbildung 2.4 auf Seite 25 und Abbildung B.5 auf Seite 149 im Anhang. Für 2.5 MeV, die mittlere Neutronenenergie des Deuterium-Deuterium Neutronengenerators ist der Neutroneneinfangswirkungsquerschnitt in Plutonium-239 mit $(4.815 \pm 1.622) \text{ mb}$ deutlich kleiner als in Plutonium-240 mit $(36.499 \pm 34.674) \text{ mb}$, wobei die Unsicherheit gerade beim Plutonium-240 sehr groß ist [112]. Die Gesamtzählrate ist deutlich niedriger als beim Uran-Target, auch wenn man die Massendifferenz berücksichtigt.

3.3.2.4 Gepulster Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und Plutonium mit n - γ -Anti-Koinzidenz

Abbildung 3.15 zeigt die Applikation eines gepulsten Deuterium-Deuterium Neutronengenerators mit einer idealen n - γ -Anti-Koinzidenz und Plutonium. Das Spektrum entspricht dem in Abbildung 3.14 ohne den Gamma-Untergrund aus induzierten Spaltungen, weder dem aus verzögerter, noch dem aus prompter Gammastrahlung. Für mehr Details sei auf den Abschnitt 3.3.1.2 verwiesen. Dadurch wird die Gesamtzählrate niedriger und die Plutonium-240 (n, γ) -Peaks sind besser zu erkennen, aber alle Peaks sind kleiner als die Unsicherheit des Untergrundes. Trotzdem ist auch mit gepulsten Neutronen und der Anti-Koinzidenz kein einziger Plutonium-239 (n, γ) -

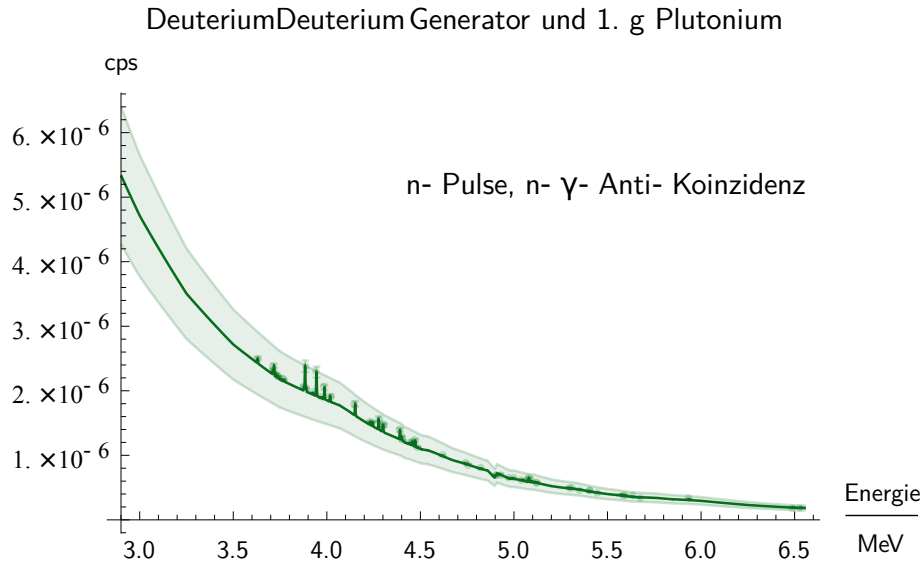


Abbildung 3.15 – Plutonium-Target mit 1 g Masse, 95 % Plutonium-239 Anteil; die $2 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen aus dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator werden mit einem *Chopper* gepulst; Ereignisse im Detektor werden nur beim Auftreffen der Neutronenpulse auf das Target und nur in Anti-Koinzidenz zu Neutronen (Spaltevents) aufgezeichnet.

Peak zu identifizieren. Die Ergebnisse der analytischen Abschätzungen deuten darauf hin, dass dieser Versuchsaufbau nicht geeignet ist, Plutonium-239 zu identifizieren, unter geeigneten Voraussetzungen aber Plutonium-240.

3.3.2.5 Thermalisierter Deuterium-Deuterium Neutronengenerator

Die bis hierhin vorgestellten Ergebnisse der analytischen Abschätzungen deuten darauf hin, dass es nicht möglich ist, die Isotopenzusammensetzung von Plutonium und Uran mit schnellen Neutronen aus einem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator zu bestimmen; auch nicht, wenn unerwünschter Untergrund durch die Pulsung der Neutronen und die Anwendung der n- γ -Anti-Koinzidenz minimiert wird. In diesem Abschnitt wird die Verwendung eines Polyethylen (PE) Moderators zur Thermalisierung der schnellen Neutronen aus dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator diskutiert. Für die analytischen Abschätzungen wird ein idealer Moderator angenommen, in dem alle einfallenden Neutronen solange Stöße mit den Moderator-Atomen durchführen, bis sie so viel Energie abgegeben haben, dass sie thermalisiert sind. Durch die Stöße ändert sich neben der Energie auch die Flugrichtung der Neutronen. Der dadurch entstehende Differenz-Faktor T zwischen den am Target ankommenden Neutronen mit (N_{mod}) und ohne (N_{org}) Thermalisierung durch einen Moderator sei $T = \frac{N_{mod}}{N_{org}}$.

Um diesen Faktor zu ermitteln, wurden verschiedene Simulationen mit *MCNP 6.1* [147], *MCNPX 2.6.0* [147] und *MCNP-PoliMi 1.5.0* [148] durchgeführt, Versionen des *Monte Carlo N-Particle code* [149]. Reijonen *et al.* haben bereits 2004 das Maximum des Verhältnisses von thermischem zu epithermischem Neutronenfluss für eine Polyethylen-Moderator-Dicke von circa 5 cm ermittelt [101]. In der verwendeten

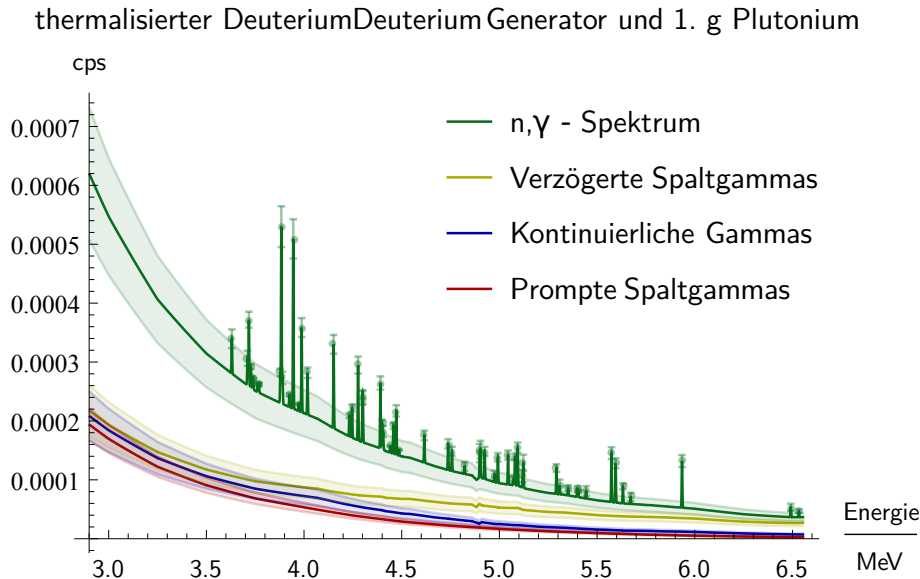


Abbildung 3.16 – Analytisch abgeschätztes (n, γ) -Spektrum des WGPu-Targets (1 g Masse, 95 % Plutonium-239 Anteil), das mit ideal thermalisierten Neutronen aus dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator bestrahlt wird ($5.6 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen am Ort des Targets).

MCNP-PoliMi Simulation wird eine monoenergetische punktförmige 2.5 MeV Neutronenquelle angenommen, die Neutronen linear ins Zentrum des Targets emittiert. Das Target ist eine Kugel mit 4 cm Durchmesser, dessen Zentrum 22 cm von der Neutronenquelle entfernt ist. Zusätzlich werden 5 cm Polyethylen in 10 cm Abstand zur Quelle (und damit 5 cm Abstand zum Target) eingebracht. Das Polyethylen ist 10 cm hoch und 10 cm breit und der Neutronenstrahl trifft es genau im Zentrum. Die einfallenden Neutronen werden im Polyethylen moderiert und gestreut. Dadurch erreichen 28.17 % der Neutronen das Target. Dieser Differenz-Faktor $T = 0.2817$ wird in den oben genannten *MCNP-PoliMi* Simulationen unterschätzt, da nur die direkt in Richtung des Target-Zentrums emittierten Neutronen berücksichtigt werden. Es werden sowohl alle Neutronen die das Target nicht direkt im Zentrum treffen ignoriert, als auch die Neutronen die ohne Polyethylen Moderator das Target verfehlen würden, aber durch das Polyethylen auf das Target gestreut werden. Deren Anteil kann durch die Anordnung zusätzlichen Polyethylens neben, über, unter und hinter der Quelle erhöht werden. Für die analytischen *Mathematica* Abschätzungen wird angenommen, dass die Neutronen perfekt thermalisiert werden. Dies führt zu einer Überschätzung der Reaktionsrate, da auch die schnelleren Neutronen als thermisch angenommen werden und damit der Wechselwirkungsquerschnitt überschätzt wird.

Abbildung 3.16 zeigt die analytische Abschätzung für diesen thermalisierten Deuterium-Deuterium Neutronengenerator mit einer Neutronenflussdichte von $\Phi_{\text{DD,th}} = T \cdot \Phi_{\text{DD}} = 5.6 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$. Das WGPu-Target hat eine Masse von $(1 \pm 0.01) \text{ g}$, einen Plutonium-239 Anteil von $(95 \pm 0.01) \%$ und einen Plutonium-240 Anteil von $(5 \pm 0.01) \%$. Das Target hat im Neutronenstrahl eine Oberfläche von $(1 \pm 0.01) \text{ cm}^2$ und eine Dicke von $(0.05 \pm 0.0005) \text{ cm}$.

Durch die Reduzierung der Neutronenenergie von 2.5 MeV zu 25 meV (der Ener-

gie thermischer Neutronen) werden gleichzeitig die Gesamtzählrate und das Verhältnis zwischen dem Neutroneneinfangswechselwirkungsquerschnitt und dem Spaltungswechselwirkungsquerschnitt hin zu den Neutroneneinfang begünstigenden Werten verschoben. Dadurch ist der Großteil der Peaks beider berücksichtigten Plutonium Isotope deutlich zu erkennen.

Die Spektren des thermalisierten Deuterium-Deuterium Neutronengenerators in Abbildung 3.16 unterscheiden sich nur durch die Zählraten und Unsicherheiten von denen des Forschungsreaktors München-II in Abbildung 3.10, da für beide Abschätzungen dieselbe Neutronenenergie und dasselbe Target angenommen wurde und sich damit nur die Neutronenflussdichte unterscheidet. Unter Berücksichtigung der verschiedenen Neutronenflussdichten lassen sich die Ergebnisse der analytischen Abschätzungen für den thermalisierten Deuterium-Deuterium Neutronengenerator mit dem Uran-Target also an denen für den Forschungsreaktor München-II mit Uran ablesen, vergleiche Abbildung 3.8. Die zu erwartende Zählrate ergibt sich zu $R_{DD,th} = T \cdot \frac{\phi_{DD}}{\phi_{FRM-II}} \cdot R_{FRM-II}$. Mit dem perfekt thermalisierten Deuterium-Deuterium Neutronengenerator ist nur der Uran-235 (n_{th}, γ)-Peak bei 6.396 MeV deutlich zu erkennen und kein einziger Uran-238 (n_{th}, γ)-Peak.⁶

3.3.2.6 Thermalisierter Deuterium-Deuterium Neutronengenerator, gepulst und mit n- γ -Anti-Koinzidenz

Da die Streuprozesse der Neutronen unterschiedlich lange dauern, macht es keinen Sinn, den Neutronengenerator zu pulsen. Die Neutronen könnten aber direkt vor dem Target durch einen *Chopper* gepulst werden. Dadurch verringert sich die Neutronenflussdichte in Abhängigkeit des gewählten Modus der Pulsung. Dieser Faktor ist nicht in der folgenden Abschätzung enthalten. Abgesehen davon lassen sich die zu erwartenden Ergebnisse für die Applikation des *Choppers* und der n- γ -Anti-Koinzidenz für Uran analog ableiten und sind damit (abgesehen von den absoluten Zählraten und den Unsicherheiten) dieselben wie für den Forschungsreaktor München-II.⁷ Beim thermalisierten Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und Uran, gepulst und mit n- γ -Anti-Koinzidenz heben sich also einige Uran-235 Peaks deutlich ab, während die stärkste Uran-238 Linie bei 4.06 MeV gerade so zu erkennen und kleiner als die Unsicherheit der analytischen Abschätzung ist. Der Einsatz dieser beiden Techniken ist erstrebenswert, verstärkt aber insbesondere die ohnehin auch ohne *Chopper* und n- γ -Anti-Koinzidenz sichtbaren Peaks.

Die Ergebnisse der analytischen Abschätzungen deuten darauf hin, dass dieser Versuchsaufbau mit thermalisiertem und gepulstem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und mit n- γ -Anti-Koinzidenz gut geeignet ist, um den Isotopenvektor von waffengrädigem Plutonium zu ermitteln; Bei hoch-angereichertem Uran kann dagegen nur das Isotop Uran-235 identifiziert werden.

⁶Darüber hinaus ist das Ergebnis der analytischen Abschätzungen für den thermalisierten Deuterium-Deuterium Neutronengenerator mit dem Uran-Target trotzdem im Anhang wiedergegeben, siehe Abbildung B.2.

⁷Das Ergebnis der analytischen Abschätzungen ist in Abbildung B.2 im Anhang dargestellt.

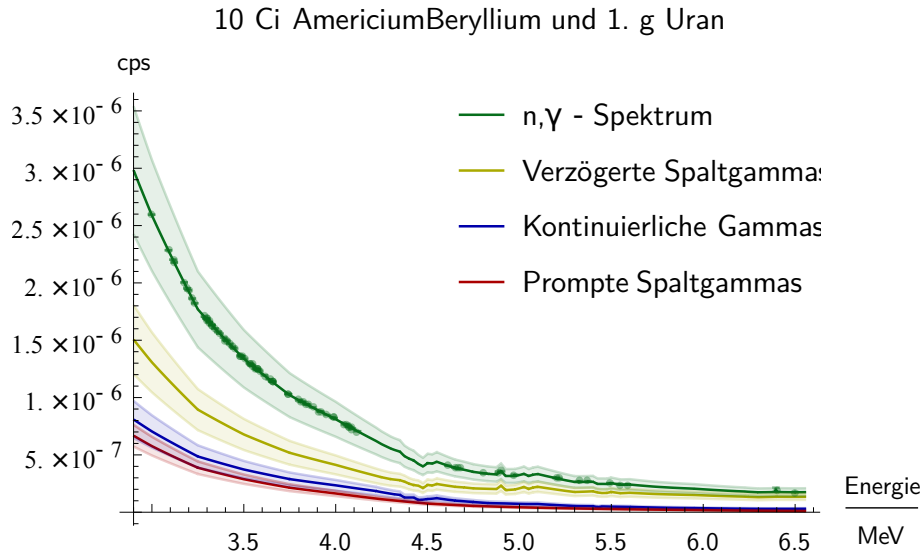


Abbildung 3.17 – Analytisch abgeschätztes (n, γ) -Spektrum des HEU-Targets (1 g Masse, 90 % Uran-235 Anreicherung), das mit $4.4 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen am Ort des Targets aus der radioaktiven Americium-241/Beryllium Neutronenquelle bestrahlt wird.

3.3.3 Americium-241/Beryllium Neutronenquelle

In diesem Abschnitt wird abgeschätzt, ob eine radioaktive Americium-241/Beryllium Neutronenquelle geeignet ist, um die Isotopenzusammensetzung von Spaltmaterial mit prompter Gamma-Aktivitäts-Analyse zu bestimmen. Die in Tabelle 3.1 aufgeführte und für die analytischen Abschätzungen verwendete Americium-241/Beryllium Quelle befindet sich im Besitz der Radiochemie der Technischen Universität München und stand für die Experimente am *Joint Research Centre* Karlsruhe zur Verfügung. Die Aktivität der Americium-241/Beryllium Quelle beträgt 10 Curie, dies entspricht $3.7 \cdot 10^{11}$ Becquerel und einer Neutronenemissionsrate von $2.2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ (Toleranz: 10 %).⁸ Für einen Abstand von $r = 2$ Zentimeter zwischen Quelle und Target ergibt sich damit eine Neutronenflussdichte von $4.4 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$. Die Americium-241/Beryllium Quelle hat eine mittlere Neutronenenergie von circa 4.5 MeV und die Neutronenenergieverteilung ist sehr breit, wie im Datenblatt in Abbildung A.2 zu sehen ist. Da das Spektrum des Datenblatts aber erst bei ungefähr 2.5 MeV beginnt, wird stattdessen das 1971 von Guarrini und Malaroda publizierte Neutronenenergiespektrum verwendet [124]. Es ist zu erwarten, dass sich die Gamma-Linien um den kinetischen Energie-Unterschied der Neutronen zu thermischen Neutronen verschieben, dieser Effekt wird aber vernachlässigt, beziehungsweise als bereits korrigiert angenommen, vergleiche Abschnitt 3.3.2.

3.3.3.1 Americium-241/Beryllium und Uran

Abbildung 3.17 zeigt das analytisch abgeschätzte (n, γ) -Spektrum des HEU-Targets mit einer Masse von $(1 \pm 0.01) \text{ g}$, einem Uran-235 Anteil von $(90 \pm 0.01) \%$ und

⁸Datenblatt der Quelle in Abbildung A.2, persönliche Kommunikation mit Christoph Lierse von Gostomski, 2015.

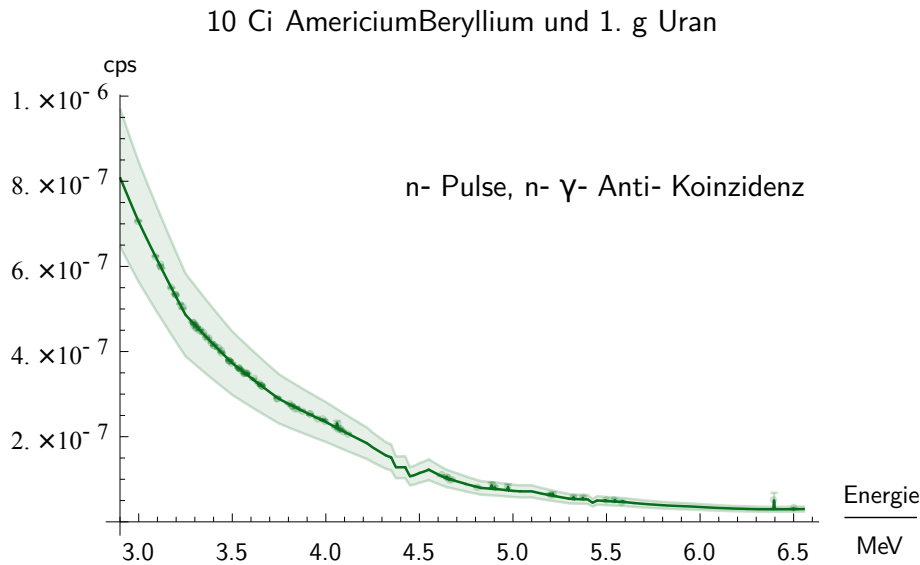


Abbildung 3.18 – Uran-Target mit 1 g Masse und 90 % Uran-235 Anreicherung; die $4.4 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen aus der radioaktiven Americium-241/Beryllium Neutronenquelle werden mit einem *Chopper* gepulst; Ereignisse im Detektor werden nur beim Auftreffen der Neutronenpulse auf das Target und nur in Anti-Koinzidenz zu Neutronen (Spaltevents) aufgezeichnet.

einem Uran-238 Anteil von $(10 \pm 0.01) \%$, bestrahlt mit $4.4 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ am Ort des Targets aus der radioaktiven Americium-241/Beryllium Neutronenquelle. Das Target hat im Neutronenstrahl eine Oberfläche von $(1 \pm 0.01) \text{ cm}^2$ und eine Dicke von $(0.05 \pm 0.0005) \text{ cm}$.

In Abbildung 3.17 ist keine einzige Uran-235 oder Uran-238 Linie aus einem Neutroneneinfang zu erkennen, außer an den Fehlerbalken. Eine Berechnung des Isotopenvektors ist so nicht möglich.

3.3.3.2 Americium-241/Beryllium und Uran mit *Chopper* und n- γ -Anti-Koinzidenz

Abbildung 3.18 zeigt die Applikation eines idealen *Choppers* und einer idealen n- γ -Anti-Koinzidenz. Das Spektrum entspricht dem in Abbildung 3.17 ohne den Gamma-Untergrund aus induzierten Spaltungen, weder dem aus verzögerter, noch dem aus prompter Gammastrahlung. Für mehr Details siehe Abschnitt 3.3.1.2. Dadurch werden der Untergrund und die Gesamtzählrate niedriger. Es ist aber weiterhin kein einziger Uran-238 Peak zu sehen. Höchstens der stärkste Uran-235(n, γ)-Peak bei 6.396 MeV ist ansatzweise zu erkennen.

Die Ergebnisse der analytischen Abschätzungen deuten darauf hin, dass dieser Versuchsaufbau auch mit *Chopper* und n- γ -Anti-Koinzidenz nicht geeignet ist den Isotopenvektor von Uran zu ermitteln.

3.3.3.3 Americium-241/Beryllium und Plutonium

Abbildung 3.19 zeigt das analytisch abgeschätzte (n, γ)-Spektrum des WGPu-Targets mit einer Masse von $(1 \pm 0.01) \text{ g}$, einem Plutonium-239 Anteil von $(95 \pm 0.01) \%$ und

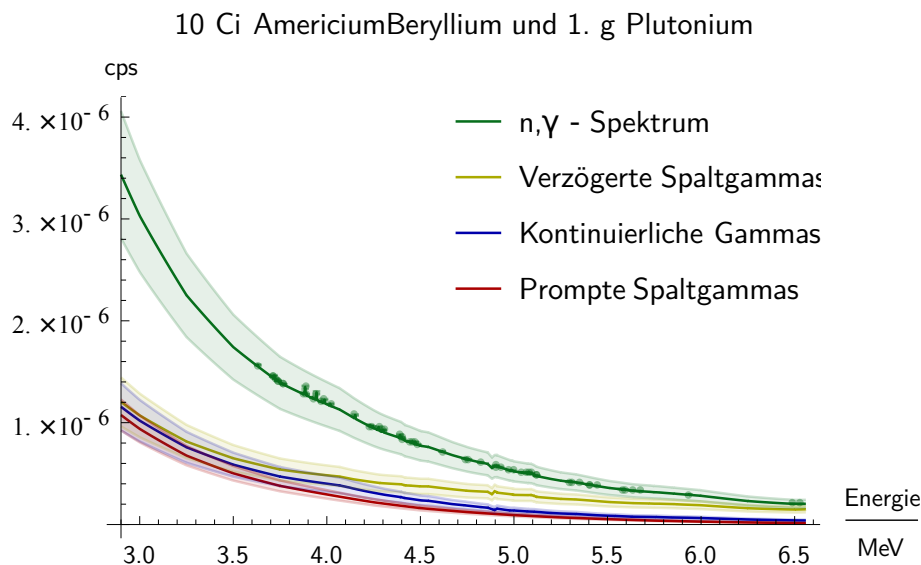


Abbildung 3.19 – Analytisch abgeschätztes (n, γ)-Spektrum des WGPu-Targets (1 g Masse, 95 % Plutonium-239 Anteil), das mit Neutronen aus der radioaktiven Americium-241/Beryllium Neutronenquelle bestrahlt wird ($4.4 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen am Ort des Targets).

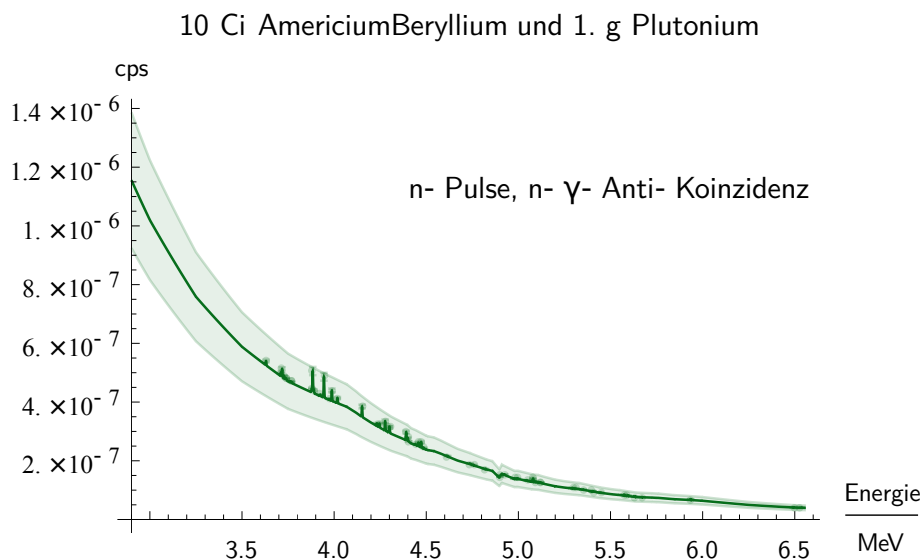


Abbildung 3.20 – Plutonium-Target mit 1 g Masse und 95 % Plutonium-239 Anteil; die $4.4 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen aus der radioaktiven Americium-241/Beryllium Neutronenquelle werden mit einem *Chopper* gepulst; Ereignisse im Detektor nur beim Auftreffen der Neutronenpulse auf das Target und nur in Anti-Koinzidenz zu Neutronen (Spaltevents) aufgezeichnet.

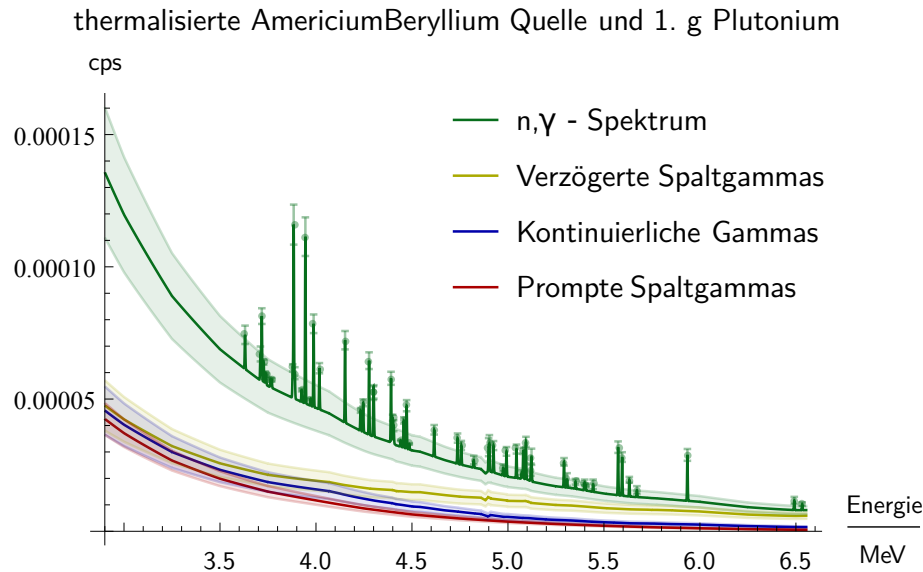


Abbildung 3.21 – Analytisch abgeschätztes (n, γ) -Spektrum des WGPu-Targets (1 g Masse, 95 % Plutonium-239 Anteil), das mit ideal thermalisierten Neutronen aus der radioaktiven Americium-241/Beryllium Neutronenquelle bestrahlt wird ($1.24 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen am Ort des Targets).

einem Plutonium-240 Anteil von $(5 \pm 0.01) \%$, bestrahlt mit $4.4 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ am Ort des Targets aus der radioaktiven Americium-241/Beryllium Neutronenquelle. Das Target hat im Neutronenstrahl eine Oberfläche von $(1 \pm 0.01) \text{ cm}^2$ und eine Dicke von $(0.05 \pm 0.0005) \text{ cm}$.

In Abbildung 3.19 ist keine einzige Plutonium Gammalinie aus einem Neutroneneinfang identifizierbar. Es kann keins der beiden Plutonium-Isotope identifiziert werden.

3.3.3.4 Americium-241/Beryllium und Plutonium mit *Chopper* und n - γ -Anti-Koinzidenz

Abbildung 3.20 zeigt die Applikation eines idealen *Choppers* und einer idealen n - γ -Anti-Koinzidenz Elektronik. Das Spektrum entspricht dem Spektrum in Abbildung 3.17 ohne den Gamma-Untergrund aus verzögerten und prompten Gammas. In Unterabschnitt 3.3.1.2 ist dieses Vorgehen ausführlicher beschrieben. Dadurch sind einige Plutonium-240(n, γ)-Peaks ansatzweise erkennbar, wobei alle kleiner sind als die Unsicherheit des Untergrundes. Es ist weiterhin kein einziger Plutonium-239(n, γ)-Peak sichtbar. Die Gesamtzählrate wird wie erwartet kleiner. Es scheint auch mit *Chopper* und n - γ -Anti-Koinzidenz nicht möglich zu sein, den Isotopenvektor von Plutonium durch Bestrahlung mit den schnellen Neutronen einer 10 Curie Americium-241/Beryllium Quelle zu messen.

3.3.3.5 Thermalisiertes Americium-241/Beryllium

Die Thermalisierung der radioaktiven Americium-241/Beryllium Neutronenquelle wird analog zur analytischen Abschätzung mit dem Deuterium-Deuterium Neutro-

nengenerator in Unterabschnitt 3.3.2.5 simuliert. Da die Americium-241/Beryllium Quelle mit 4.5 MeV eine höhere Neutronenenergie hat als der Deuterium-Deuterium Neutronengenerator, führt dies zu einer Unterschätzung der Neutronenenergie und Überschätzung des Signals.

Abbildung 3.21 zeigt die analytische Abschätzung für die thermalisierte Americium-241/Beryllium Neutronenquelle mit einer Neutronenflussdichte von $\Phi_{AmBe,th} = T \cdot \Phi_{AmBe} = 1.24 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$. Das WGPu-Target hat eine Masse von $(1 \pm 0.01) \text{ g}$, einen Plutonium-239 Anteil von $(95 \pm 0.01) \%$ und einen Plutonium-240 Anteil von $(5 \pm 0.01) \%$. Das Target hat im Neutronenstrahl eine Oberfläche von $(1 \pm 0.01) \text{ cm}^2$ und eine Dicke von $(0.05 \pm 0.0005) \text{ cm}$.

Es sind über die Hälfte der Peaks beider analytisch abgeschätzten Plutonium Isotope deutlich zu erkennen. Die Zählraten sind dank der höheren thermischen Neutroneneinfangwechselwirkungsquerschnitte deutlich höher als bei der nicht thermalisierten Americium-241/Beryllium Quelle und durch die niedrigere Neutronenflussdichte kleiner als beim Forschungsreaktor München-II.

Genau wie beim thermalisierten Deuterium-Deuterium Neutronengenerator (Unterabschnitt 3.3.2.5) entsprechen diese analytischen Abschätzungen abgesehen von den Zählraten und Unsicherheiten denen mit den Forschungsreaktor München-II, da dieselbe Neutronenenergie angenommen wird. Daraus folgt, dass nur der Uran-235 (n_{th}, γ)-Peak bei 6.396 MeV deutlich zu erkennen ist und kein einziger Uran-238 (n_{th}, γ)-Peak.⁹

3.3.3.6 Thermalisiertes Americium-241/Beryllium mit *Chopper* und n- γ -Anti-Koinzidenz

Auch für die Applikation des *Choppers* und der n- γ -Anti-Koinzidenz für thermalisierte Neutronen aus Americium-241/Beryllium und Uran lassen sich die zu erwartenden Ergebnisse anhand der Ergebnisse der analytischen Abschätzungen für den Forschungsreaktor München-II nachvollziehen, von denen sie sich nur in den absoluten Zählraten und den Unsicherheiten unterscheiden. Bei der thermalisierten Americium-241/Beryllium Neutronenquelle und Uran mit *Chopper* und n- γ -Anti-Koinzidenz heben sich also einige Uran-235 Peaks deutlich ab. Die stärkste Uran-238 Linie bei 4.06 MeV ist gerade so zu erkennen und kleiner als die Unsicherheit.¹⁰ Abbildung 3.22 zeigt die Applikation eines idealen *Choppers* und einer idealen n- γ -Anti-Koinzidenz Elektronik für thermalisiertes Americium-241/Beryllium und Plutonium. Das Spektrum entspricht dem in Abbildung 3.21 ohne den Gamma-Untergrund von prompter und verzögerter Gammastrahlung aus induzierten Spaltungen, siehe Abschnitt 3.3.1.2. Dadurch wird die Gesamtzählrate niedriger und sowohl die Plutonium-239, als auch die Plutonium-240(n_{th}, γ)-Peaks sind im Verhältnis zum Hintergrund deutlich stärker. Nahezu alle analytisch abgeschätzten Peaks sind deutlich größer als die Unsicherheit. Die Zählrate im stärksten Plutonium-240(n_{th}, γ)-Peak bei 3.884 MeV sinkt im Vergleich zu der analytischen Abschätzung ohne *Chopper* und n- γ -Anti-Koinzidenz Elektronik gerade mal von $3.4 \cdot 10^{-4} \text{ cps}$ (*counts per second*, Englisch für gezählte Ereignisse pro Sekunde) auf $2.3 \cdot 10^{-4} \text{ cps}$.

⁹Das Ergebnis der analytischen Abschätzungen ist im Anhang aufgeführt, siehe Abbildung B.4.

¹⁰Vergleiche Abbildung B.4 im Anhang.

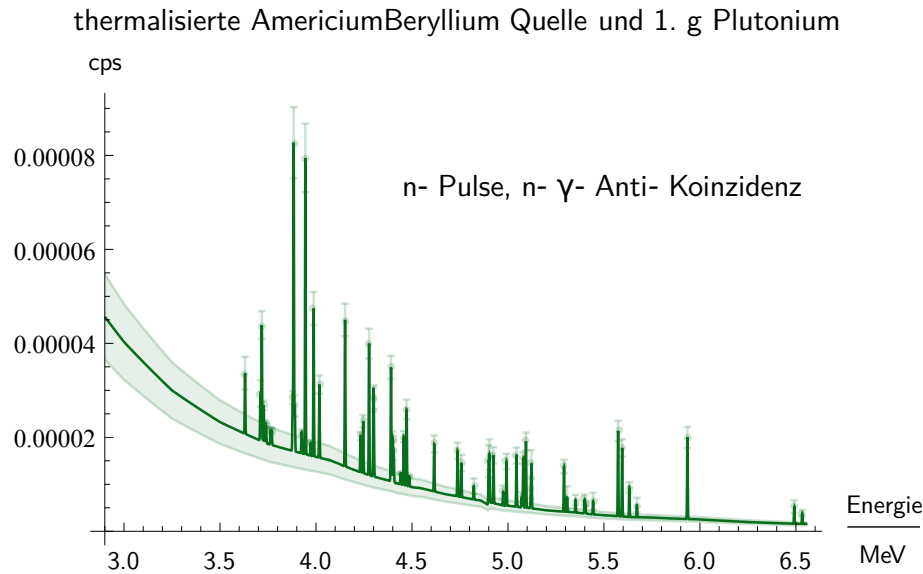


Abbildung 3.22 – Plutonium-Target mit 1 g Masse und 95 % Plutonium-239 Anteil; die ideal thermalisierten $1.24 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ Neutronen aus der radioaktiven Americium-241/Beryllium Neutronenquelle werden mit einem *Chopper* gepulst; Ereignisse im Detektor werden nur beim Auftreffen der Neutronenpulse auf das Target und nur in Anti-Koinzidenz zu Neutronen (Spaltevents) aufgezeichnet.

Die Ergebnisse der analytischen Abschätzungen deuten darauf hin, dass dieser Versuchsaufbau mit *Chopper* und Anti-Koinzidenz gut geeignet ist, um den Isotopenvektor von Plutonium zu ermitteln. Dabei ist allerdings zu berücksichtigen, dass hier der Versuchsaufbau-spezifische passive und aktive Untergrund nicht berücksichtigt sind.

Für Uran und thermalisiertes Americium-241/Beryllium ist das Ergebnis der analytischen Abschätzungen genau wie beim Forschungsreaktor München-II, dass auch mit *Chopper* und n- γ -Anti-Koinzidenz zwar einige Uran-235(n_{th}, γ)-Peaks zu erkennen sind, aber kein einziger Uran-238(n_{th}, γ)-Peak.¹¹

¹¹Das Ergebnis der analytischen Abschätzungen ist im Anhang wiedergegeben, siehe Abbildung B.4.

3.4 Zwischenfazit: Analytische Abschätzungen

Es wurden ausführliche analytische Abschätzungen zur prompten Gamma-Aktivitäts-Analyse von waffengrädigem Plutonium und Uran durchgeführt. Der Schwerpunkt der analytischen Abschätzungen lag auf thermischen Neutronen. Für die Analyse wurden einige sehr grundlegende Annahmen getroffen, insbesondere die Vernachlässigung der Neutronenstreuung in den Targets und die Verschiebung der Neutroneneinfangsgammapeaks mit nicht-thermischen Neutronenenergien. Beide betreffen insbesondere Einfänge von Neutronen hoher Energien und müssen bei der Interpretation der Ergebnisse bedacht werden. Es wurden drei Neutronenquellen simuliert: der Forschungsreaktor München-II, ein Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und eine radioaktive Americium-241/Beryllium Quelle. Darüber hinaus wurden auch externe Bleiabschirmungen, ein idealer *Chopper* und eine ideale n- γ -Anti-Koinzidenz Elektronik, eine Thermalisierung der Neutronen und gegebenenfalls die Kombination dieser betrachtet. Die analytischen Abschätzungen dienen vor allem der Vorbereitung von prompten Gamma-Aktivitäts-Analyse Experimenten.

Das erste wichtige Ergebnis dieser Abschätzungen ist die Feststellung, dass die Datengrundlage für solche Abschätzungen sehr begrenzt ist. Die verschiedenen publizierten thermischen Neutroneneinfangs-Gammalinien für Plutonium und Uran sind in sehr guter Übereinstimmung miteinander, die spezifischen Wechselwirkungsquerschnitte aber nicht, auch nicht in den beiden großen Datenbanken *PGAA* und *CapGam*. Für nicht-thermischen Neutroneneinfang in Spaltmaterial sind kaum experimentelle Daten publiziert. Hier gibt es sehr großen Forschungsbedarf.

Die Ergebnisse der analytischen Abschätzungen deuten darauf hin, dass es anspruchsvoll ist, den Isotopenvektor von waffengrädigem Uran mit prompter Gamma-Aktivitäts-Analyse zu bestimmen. Beim Neutroneneinfang thermischer Neutronen (beim Forschungsreaktor, sowie bei der Thermalisierung des Deuterium-Deuterium Neutronengenerators und der Americium-241/Beryllium Quelle) ist nur ein von Uran-235 stammender Peak deutlich zu erkennen. Für die schnellen Neutronen aus den nicht thermischen beziehungsweise nicht thermalisierten Neutronenquellen ist auch dieser Peak kaum sichtbar. Die Applikation des *Choppers* und der n- γ -Anti-Koinzidenz Elektronik verbessern zwar das Peak-zu-Untergrund-Verhältnis signifikant und es werden mit thermischen Neutronen mehr Peaks sichtbar, diese stammen aber auch aus Neutroneneinfängen in Uran-235 und selbst die stärksten Uran-238(n, γ)-Peaks sind kaum zu erkennen und kleiner als die Unsicherheit der analytischen Abschätzung, in der der aktive Hintergrund durch die Messumgebung nicht berücksichtigt ist.

Für die Bestimmung des Verhältnisses von Plutonium-239 zu Plutonium-240 ist die prompte Gamma-Aktivitäts-Analyse mit thermischen Neutronen besser geeignet. Dies gilt sowohl für den Forschungsreaktor, als auch für die thermalisierten Neutronenquellen, den Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und Americium-241/Beryllium. Dabei hebt sich der Großteil der Plutonium-239 und Plutonium-240 Neutroneneinfangslinien signifikant vom Untergrund ab, sodass die Notwendigkeit eines *Choppers* oder einer n- γ -Anti-Koinzidenz Elektronik vor allem vom anderweitigen aktiven Messhintergrund abhängt. Die schnellen Neutronen des Deuterium-Deuterium Neutronengenerators und der radioaktiven Americium-241/Beryllium

Quelle scheinen dagegen nicht für Neutroneneinfangmessungen mit Plutonium geeignet zu sein.

Alternativ kann versucht werden, den Anreicherungsgrad von Uran mit neutroneninduzierten Neutronenmessungen festzustellen, indem man die Spaltschwelle von Uran-238 ausnutzt, vergleiche Wechselwirkungsquerschnitt für Spaltungen in Uran-238 in Abbildung B.5.¹² Dazu werden zwei aktive Neutronenmessungen durchgeführt: Zuerst wird das Spaltmaterial mit Neutronen einer Energie deutlich unterhalb der Spaltschwelle von Uran-238 bei circa 1 MeV bestrahlt und so die mittlere Anzahl an Spaltneutronen aus dem Uran-235 gemessen. Danach wird mit Neutronenenergien deutlich oberhalb der Spaltschwelle von Uran-238 bestrahlt und damit die mittlere Anzahl an Spaltneutronen aus Uran-235 und Uran-238 gemessen. Aus dem Verhältnis der beiden Messungen lässt sich der Anreicherungsgrad von Uran prinzipiell bestimmen. In einer von dem Autor mitbetreuten Bachelorarbeit wurde auf den oben beschriebenen *Mathematica* Skripte aufbauend untersucht, inwiefern die Messung des Anreicherungsgrads von Uran mit neutroneninduzierten Neutronenmessungen möglich ist. Die genaue Vorgehensweise, sowie alle Ergebnisse können in der Bachelorarbeit *Neutroneninduzierte Neutronen in U-235 und U-238* von David Rothmaier nachgelesen werden [150].

Für die im nächsten Kapitel vorgestellten Messungen wurden ebenfalls analytische Abschätzungen durchgeführt. Dabei wurden die Parameter Isotopenzusammensetzung des Targets, Masse des Targets, bestrahlte Fläche des Targets, Neutronenflussdichte, Neutronenenergie und Bestrahlungszeit an die tatsächlichen Messbedingungen angepasst. Die Ergebnisse dieser analytischen Abschätzungen werden im nächsten Kapitel jeweils zusammen mit den Messergebnissen vorgestellt.

¹²Der Isotopenvektor von Plutonium kann so nicht gemessen werden, da die Spaltschwelle von Plutonium-240 zu niedrig ist, vergleiche Abschnitt 2.2 oder die Plutonium-240 Spaltungswechselwirkungsquerschnitte in Abbildung B.5.

Kapitel 4

Messungen und Ergebnisse

In diesem Abschnitt werden die im Rahmen dieser Forschungsarbeit durchgeführten Messungen von Gammastrahlung aus Neutroneneinfängen in Spaltmaterial vorgestellt. Die im vorangehenden Abschnitt beschriebenen umfassenden analytischen Abschätzungen dienten der Vorbereitung solcher Messungen. Zusammen mit den Messergebnissen, werden die entsprechenden analytischen Abschätzungen mit an den Messaufbau angepasster Isotopenzusammensetzung des Targets, Masse des Targets, bestrahlter Fläche des Targets und Bestrahlungszeit vorgestellt. Die durch induzierte Spaltungen im Spaltmaterial-Target verursachte prompte und verzögerte Gammastrahlung, sowie der kontinuierliche Untergrund aus Neutroneneinfängen sind in den dargestellten analytischen Abschätzungen berücksichtigt. Die Abschätzungen beschränken sich auf die hoch-energetische Gammastrahlung im Energiebereich von 2.9 MeV bis 6.56 MeV, in dem die passiven Gammaemissionen der Spaltmaterial-Targets vernachlässigbar sind.

Es wurden drei Messkampagnen durchgeführt. Die größte Herausforderung war es Zugang zu -möglichst waffengrädigem- Spaltmaterial zu bekommen; die zweitgrößte, dieses Spaltmaterial mit Neutronen bestrahlen zu können. Es wurden zwei Messungen in Deutschland und eine Messung in Ungarn durchgeführt, wobei jeweils der beste unter den gegebenen Umständen mögliche Versuchsaufbau ausgewählt wurde. Im Sommer 2015 wurde am Fraunhofer-Institut für Naturwissenschaftlich-Technische Trendanalysen INT in Euskirchen eine Messkampagne mit den dort verfügbaren Neutronengeneratoren und abgereichertem Uran durchgeführt. Im Herbst 2015 wurde am Budapest Neutron Centre (BNC) in Ungarn eine kleine Menge Plutonium-239 aus Belgien mit Neutronen aus dem BNC Forschungsreaktor bestrahlt. Im Sommer 2016 wurden am *Joint Research Centre* Karlsruhe PGAA Messungen mit den vorhandenen Spaltmaterial-Proben mit verschiedenen Massen und Anreicherungen mit thermalisierten Neutronen aus einer radioaktiven Americium-241/Beryllium Quelle aus der Radiochemie München (RCM) vorgenommen. Tabelle 4.1 zeigt eine Übersicht der in den drei Experimenten verwendeten Neutronenquellen mit ihren Neutronenausbeuten und den für die analytischen Abschätzungen angenommenen Neutronenflussdichten am Ort der Targets und den Spaltmaterial-Targets mit Massen. Die Neutronenquellen wurden bereits in Unterabschnitt 3.1.1 und Tabelle 3.1 näher spezifiziert, die Eigenschaften der Spaltmaterial-Targets werden in den Unterabschnitten dieses Kapitels näher charakterisiert. Neben der Masse und der Isotopenzusam-

Neutronenquelle	Ausbeute s^{-1}	Φ^* $s^{-1} \text{ cm}^{-2}$	Target	Masse g
Deuterium-Deuterium [°]	$2 \cdot 10^6$	$2 \cdot 10^2$	Abgereichertes Uran	1990
Deuterium-Tritium [°]	$2 \cdot 10^8$	$2 \cdot 10^4$		
Forschungsreaktor	$2 \cdot 10^{14}$	$5 \cdot 10^7$	Plutonium-239	0.000429
Americium-241/ Beryllium	$2.2 \cdot 10^7$	$4.5 \cdot 10^3$	Plutoniumdioxid	51
			Fünf Plutoniumpr.	110
			Zwanzig Plutoniumpr.	158
			Urandioxid	707
			Metallisches Uran	183
			Triuranooctoxid	2375

* Für die analytischen Abschätzungen angenommene Neutronenflussdichte am Ort des Targets.

° Maximale Neutronenausbeute im gepulsten Betrieb, im kontinuierlichen Betrieb 50%.

Tabelle 4.1 – Übersicht der in den drei Experimenten verwendeten Neutronenquellen und Spaltmaterial-Targets.

mensetzung spielt auch die Geometrie eine bedeutende Rolle, da von dieser und der sich aus der Isotopenzusammensetzung ergebenden mittleren freien Weglänge der Neutronen abhängt, wie intensiv die Masse bestrahlt wird.

4.1 Abgereichertes Uran und Neutronengeneratoren

Das Fraunhofer-Institut für Naturwissenschaftlich-Technische Trendanalysen INT in Euskirchen verfügt über Deuterium-Deuterium und Deuterium-Tritium Neutronengeneratoren, sowie über abgereichertes Uran. Entsprechend konnten dort mit moderatem Aufwand erste eigene Neutroneneinfangsmessungen durchgeführt und erste Erfahrungen gesammelt werden.

Abbildung 4.1 zeigt den Versuchsaufbau mit dem Deuterium-Tritium Neutronengenerator. Das Uran hat einen Uran-235 Anreicherungsgrad von circa 0.3% und eine Masse von 1.99 kg. Es liegt in Form eines Würfels mit Kantenlängen von circa $5 \text{ cm} \cdot 5 \text{ cm} \cdot 4 \text{ cm}$ vor, ummantelt von Edelstahl. Für diese Isotopenzusammensetzung ergibt sich eine mittlere freie Weglänge von 1.71 cm für thermische Neutronen, vergleiche Tabelle 3.3. Der Uranwürfel ist aus Sicht der Neutronenquelle mit 4 cm deutlich dicker als die mittlere freie Weglänge, wodurch ein signifikanter Anteil der Masse nur sehr schwach mit Neutronen bestrahlt wird. Der Uranwürfel ist in der Abbildung nicht zu sehen, da er komplett von Polyethylen (weiß) und Blei (grün lackiert) umgeben ist. Zwischen dem Entstehungsort der Neutronen (1) und dem Uranwürfel (2) befinden sich 15 cm Polyethylen als Moderator und darüber hinaus noch mehr Polyethylen hinter, über und unter der Neutronenquelle und dem Uranwürfel um Rückstreuungen zu ermöglichen. Der Gammadetektor (3) blickt direkt auf den Uranwürfel, ist aber durch circa 15 cm abschirmendes Blei von dem Neutronengenerator getrennt. Darüber hinaus wird er durch zusätzliches Blei, auch hinter dem Uranwürfel, von sonstigen Gammaemissionen abgeschirmt. Bei den vorherge-

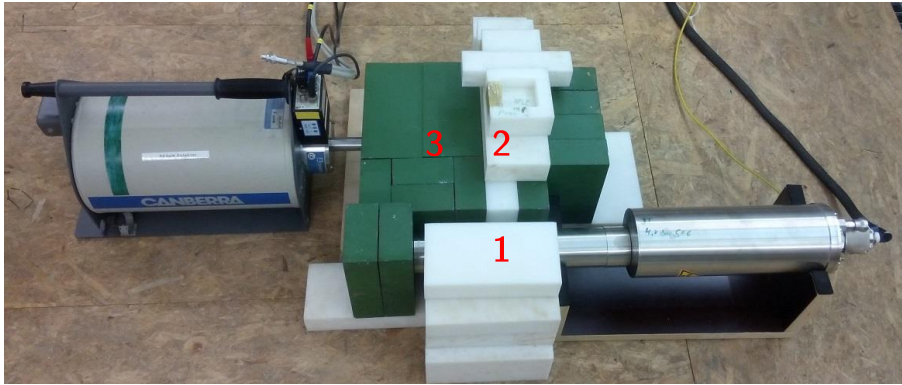


Abbildung 4.1 – Photographie des Versuchsaufbaus mit dem Deuterium-Tritium Neutronengenerator. Die Neutronen entstehen in der Neutronenröhre des Neutronengenerators (1). Das angereicherte Uran ist von Polyethylen (weiß) und Blei (grün) umgeben (2). Von dem Gammadetektor ist nur der Stickstofftank sichtbar, der Germaniumkristall ist durch Blei (grün) abgeschirmt (3).

henden Versuchsaufbauten mit mehr Polyethylen und weniger Blei war die Totzeit des Germaniumdetektors auch bei dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator mit bis zu 84 % unakzeptabel hoch. Diese Versuchsmessungen hatten darüber hinaus gezeigt, dass bei diesem Aufbau auf zusätzliches Polyethylen zwischen der Neutronenquelle und dem Germaniumdetektor verzichtet werden kann, ohne dass Letzterer dadurch Schaden nimmt.

Der verwendete Germaniumdetektor ist ein n-type *Canberra* GR3520 mit einer relativen Effizienz von 39.2 % und einer Auflösung von 0.88 keV bei 122 keV und 1.95 keV bei 1332 keV. Zunächst wurden die Energie und die Effizienz des Detektors mit bekannten Quellen kalibriert. Für die Energiekalibrierung ergab sich mit Cobalt-60 bei 1334 keV, mit Caesium-137 bei 662 keV, mit Barium-133 bei 356 keV und mit Americium-241 bei 60 keV eine lineare Beziehung. Bei der Analyse wurde die Energiekalibrierung wo möglich mit der Neutroneneinfangzerfallslinie von Wasserstoff bei 2223 keV und den Gammaquanten der e^-e^+ Paarvernichtung bei 511 keV angepasst.

Die verwendeten Neutronengeneratoren sind beide vom Typ GENIE16C und unterscheiden sich nur darin, dass das MEN 16G Neutronen-Emissions-Modul beim einen mit einer Deuterium-Deuterium Neutronenröhre und beim anderen mit einer Deuterium-Tritium Neutronenröhre ausgestattet ist. Der Deuterium-Deuterium Neutronengenerator hat eine mittlere Neutronenenergie von 2.5 MeV und einen durchschnittlichen kontinuierlichen Neutronenfluss von $1 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$, die maximale Neutronenausbeute liegt bei $2 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$. Der Tritium-Deuterium Neutronengenerator hat eine mittlere Neutronenenergie von 14 MeV und einen durchschnittlichen kontinuierlichen Neutronenfluss von $1 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$, die maximale Neutronenausbeute liegt bei $2 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$. Detaillierte Spezifikationen sind im Datenblatt *Anlage NG 04 Systemübersicht, Komponenten und Spezifikationen* in Abbildung A.1 im Anhang aufgeführt. Der Schwerpunkt der Messungen lag auf dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator. Der Deuterium-Tritium Neutronengenerator hat durch seine hohe Neutronenenergie die Eigenschaft, tiefer in das untersuchende Material zu schauen, wird aber aufgrund der im hohen Energiebereich sehr niedrigen Wechselwirkungs-

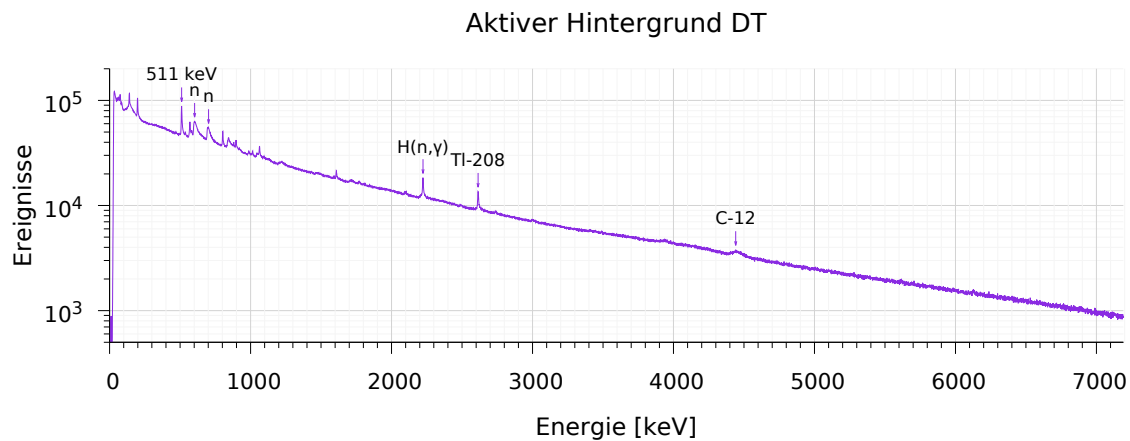


Abbildung 4.2 – Aktives Hintergrundspektrum mit dem Deuterium-Tritium Neutronengenerator, aufgenommen am 01.07.2015 ab 10⁴⁸ Uhr, die *Live time* beträgt 404 Sekunden, der Totzeit-Anteil 73.3 %.

querschnitte für Neutroneneinfänge eher für andere Messtechniken verwendet. Da er aber aufgrund der Baugleichheit sehr leicht eingesetzt werden konnte, wurden auch Messungen mit dem Deuterium-Tritium Neutronengenerator durchgeführt. Die Neutronengeneratoren wurden jeweils auch gepulst betrieben, es war allerdings zum gegebenen Zeitpunkt nicht möglich, ein entsprechendes *Gate* für den Germaniumdetektor bereitzustellen, sodass dieser auch dann kontinuierlich gemessen hat, wenn die Neutronengeneratoren gepulst betrieben wurden.

Der gesamte Versuchsaufbau befindet sich in einem Raum, der durch dicke Betonwände von der Außenwelt abgeschirmt ist - und anders herum. Das führt beim Betrieb der Neutronengeneratoren dazu, dass die Neutronen nicht einfach wegfliegen, sondern im Beton zurückgestreut werden. Dies erhöht den aktiven Hintergrund, der durch die Neutronenquelle verursacht wird.

In den nachträglich durchgeführten analytischen Abschätzungen für diesen Versuchsaufbau, ergeben sich die Neutronenflussdichten am Ort des Targets zu

$$\Phi_i = T \cdot \Phi_{i,0} / (4\pi r^2), \quad (4.1)$$

wobei der Abstand zwischen dem jeweiligen Neutronengenerator und dem Target $r = 15$ cm beträgt und der Differenz-Faktor $T = 0.2817$, vergleiche Unterabschnitt 3.3.2.5. Darüber hinaus hängen die Neutronenflussdichten von dem jeweils verwendeten Neutronengenerator ab und ob dieser kontinuierlich oder gepulst betrieben wird. Die in den analytischen Abschätzungen verwendete Oberfläche des Targets in Richtung der Neutronenquelle beträgt (25 ± 0.01) cm², die Dicke (4 ± 0.01) cm, die Masse (1990 ± 1) g, der Uran-235 Anteil 0.3 ± 0.1 , der von Uran-238 99.7 ± 0.1 .

4.1.1 Aktiver Hintergrund

Abbildung 4.2 zeigt den aktiven Hintergrund mit dem Deuterium-Tritium Neutronengenerator im kontinuierlichen Modus. Das Spektrum hat eine *Live time* (also

eine Totzeit-korrigierte Messzeit) von 404 Sekunden, das entspricht knapp 7 Minuten. Der Anteil der Totzeit ist mit 73.3% sehr hoch. Der Großteil der Ereignisse ist wahrscheinlich auf die Reaktionen der 14.1 MeV Neutronen in den umgebenden Materialien zurückzuführen. Es sind einige Zerfallslinien zu erkennen, im hoch-energetischen Bereich über 3 MeV ist der Kohlenstoff-12 Peak der einzig sichtbare. Darunter dominieren der Thallium-208 Peak bei 2614 keV, der Wasserstoff (n, γ)-Peak bei 2223 keV und der e^-e^+ Paarvernichtungspeak bei 511 keV. Dass Neutronen trotz der Abschirmung den Detektorkristall erreichen, kann man an den typischen, dreieckigen Peaks mit einer steilen linken und einer flachen rechten Flanke oberhalb des Paarvernichtungspeaks erkennen, die durch inelastische Streuung von Neutronen am Germanium entstehen [151].

4.1.2 Abgereichertes Uran mit Deuterium-Tritium Neutronengenerator

Das Spektrum des kontinuierlich betriebenen Deuterium-Tritium Neutronengenerators mit dem abgereicherten Uran unterscheidet sich kaum von dem Hintergrundspektrum, vergleiche Abbildung 4.3, oben. Die *Live time* und der Totzeitanteil sind mit 403 Sekunden und 69.2% vergleichbar. Auch hier dominieren der Kohlenstoff-12-, der Thallium-208-, der Wasserstoff- und der Paarvernichtungspeak. Im hoch-energetischen Bereich über 3 MeV sind keine weiteren Peaks zu erkennen, höchstens andeutungsweise bei gut 5.6 MeV und bei gut 6.1 MeV.

Der kontinuierlich betriebene Deuterium-Tritium Neutronengenerator erzeugt insgesamt $1 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$ Neutronen. Mit Formel 4.1 ergibt sich eine Neutronenflussdichte von $1 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ am Ort des Targets. Das Ergebnis der entsprechenden analytischen Abschätzungen für 403 Sekunden ist auch in Abbildung 4.3, oben, grüne Kurve dargestellt. Es ist um über drei Größenordnungen niedriger als die Messungen und wird deshalb mit dem Faktor 100 verstärkt dargestellt. Dies deckt sich damit, dass kein Uran Peak im gemessenen Spektrum zu erkennen ist, da die Neutroneneinfangsignatur im Uran viel kleiner ist, als der aktive Hintergrund.

Wird der Neutronengenerator gepulst, wird der Hintergrund deutlich geringer, siehe Abbildung 4.3, unten. Entsprechend sinkt der Anteil der Totzeit und ist mit 31.1% nicht einmal halb so groß als bei der kontinuierlichen Neutronenbestrahlung. Die *Live time* beträgt 139 Sekunden, gut 2 Minuten. Der Deuterium-Tritium Neutronengenerator emittiert alle 1000 μs einen 100 μs langen Neutronenpuls von $2 \cdot 10^4$ Neutronen. Der Germaniumdetektor hat bei der Messung kontinuierlich Ereignisse aufgezeichnet. Dieser Versuchsaufbau entspricht deshalb nicht dem *Chopper-Setup* der analytischen Abschätzungen, bei dem der Germaniumdetektor nur während der Bestrahlungspulse misst. Aufgrund des geringeren Hintergrundes ist der Paarvernichtungspeak und in noch größerem Maße der Wasserstoff (n, γ)-Peak deutlich ausgeprägter. Der Kohlenstoff-12 und Thallium-208 Peak sind nicht sichtbar. Im hoch-energetischen Bereich sind nun schwach zwei Peaks erkennbar, bei ungefähr 5628 keV und 6143 keV. Die Energiekalibrierung muss extrapoliert werden, da oberhalb der Wasserstoff (n, γ)-Linie keine Gamma-Linien mehr für die Kalibrierung zur Verfügung stehen.

Im gepulsten Betrieb emittiert der Deuterium-Tritium Neutronengenerator in

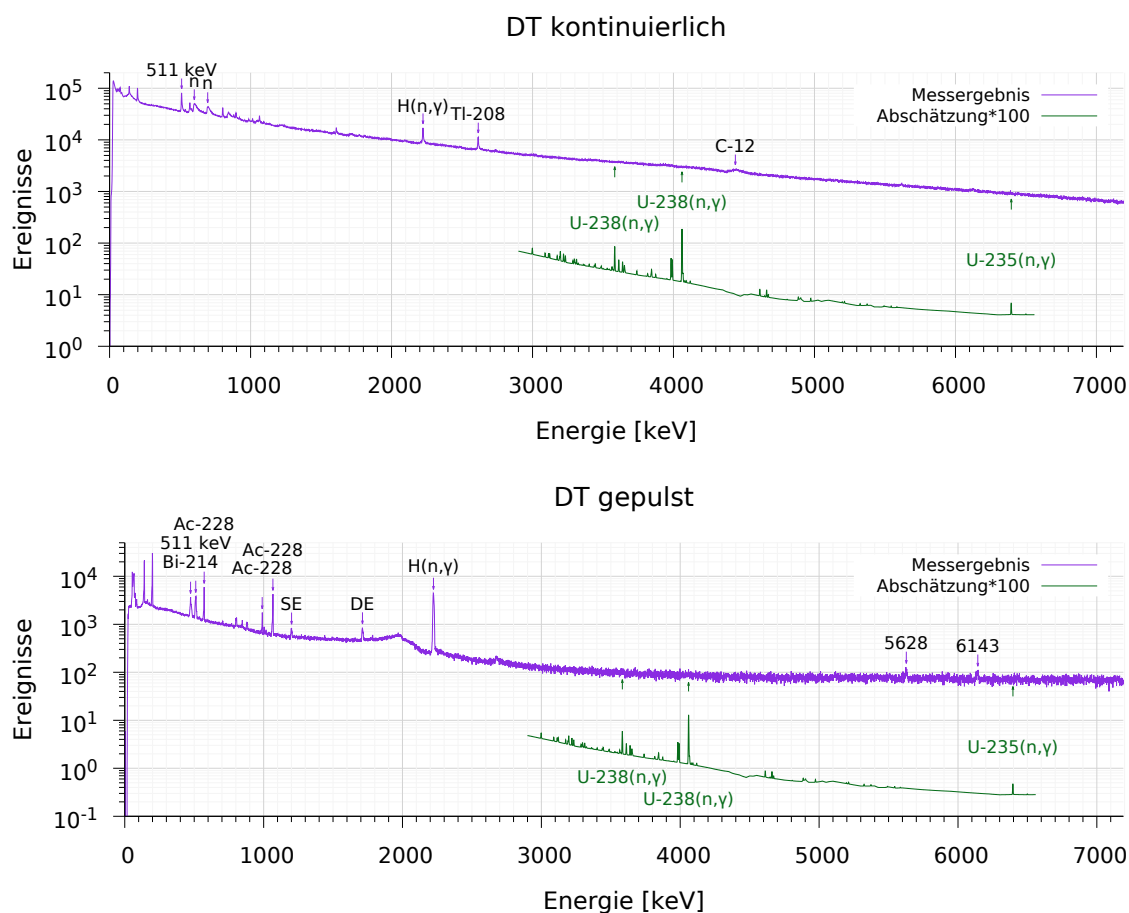


Abbildung 4.3 – Gammaspektrum des angereicherten Urans (lila), bestrahlt mit Neutronen aus dem Deuterium-Tritium Neutronengenerator. Oben mit kontinuierlicher Neutronenbestrahlung, aufgenommen am 30.06.2015 ab 16¹⁷ Uhr, die *Live time* beträgt 403 Sekunden, der Totzeit-Anteil 69.2%; unten gepulst, aufgenommen am 30.06.2015 ab 11³⁹ Uhr, die *Live time* beträgt 139 Sekunden, der Anteil der Totzeit 31.1%. Zusätzlich ist das mit einem Faktor 100 multiplizierte Ergebnis der analytischen Abschätzung dargestellt (grün).

den Pulsen $2 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$ Neutronen, das entspricht mit Formel 4.1 einer Neutronenflussdichte von $2 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ am Ort des Targets. Da in den analytischen Abschätzungen keine Totzeit berücksichtigt wird, wird ein Zehntel der *Live time* als Bestrahlungszeit angenommen, also 13.9 Sekunden. Die entsprechende analytische Abschätzung ist in Abbildung 4.3, unten, grüne Kurve, hundertfach verstärkt dargestellt. Die Zählraten sind auch in den stärksten Peaks deutlich mehr als zwei Größenordnungen kleiner als die Gemessenen. Die stärkste Uran-238 (n, γ)-Linie ist bei 4060 keV zu erwarten, die stärkste von Uran-235 bei 6395 keV. Bei diesen Energien sind definitiv keine Peaks zu erkennen. Die zu erwartenden Neutroneneinfangspeaks sind um mehrere Größenordnungen schwächer als der aktive Untergrund des Versuchsaufbaus.

Die Peakflächen der beiden sichtbaren Zerfallslinien bei circa 5628 keV und 6143 keV sind mit 369 und 109 Ereignissen sehr klein. Zum Vergleich: Die Neutroneneinfangzerfallslinie von Wasserstoff hat eine Peakfläche von 47 706 Ereignissen

sen. Prinzipiell kommt eine Vielzahl von Isotopen für Gammalinien in diesen Bereichen in Frage, da gerade beim Neutroneneinfang in komplexen Atomkernen sehr viele Übergänge zur Verfügung stehen. So haben zum Beispiel Brom-81, Caesium-133, Brom-79, Hafnium-177, Iod-127, Selen-76, Antimon-121 und Cadmium-111 alle Gammaübergänge bei 5628 keV [152]. Alle haben jedoch auch stärkere Peaks, die nicht im Spektrum zu sehen sind und können deshalb über das Verhältnis der gemessenen Zählraten ausgeschlossen werden. Wegen der Messunsicherheit, insbesondere wegen der Extrapolation der Kalibrierung in diesem Energiebereich kommen auch Isotope mit Gamma-Linien leicht ober- und unterhalb von 5628 keV in Frage. Dies ist mit Sicherheit bei dem zweiten Peak bei 6143 keV der Fall, da es in der CapGam Datenbank bei genau dieser Energie keinen Übergang gibt [153]. Alleine bei den Energien 6142 keV und 6144 keV kommen dagegen jeweils vier Isotope in Betracht: Strontium-86, Argon-40, Rubidium-85 und Arsen-75, beziehungsweise Wolfram-182, Europium-151, Tellur-125 und Gadolinium-157 [153]. Diese können aber wiederum alle über die Verhältnisse der gemessenen Zählraten ausgeschlossen werden. Uran-238 hat ein Energieniveau bei 6146 keV, aber keinen Übergang mit einer entsprechenden Energie [154, 155]. Darüber hinaus gibt es sehr viele weitere Isotope, die Gamma-Übergänge in der unmittelbaren Nähe haben. Für die beiden Peaks bei 5628 keV und 6143 keV konnte aber trotz sorgfältiger Prüfung jeweils kein Isotop zugeordnet werden. Die Extrapolation der Kalibrierung führt anscheinend zu größeren Abweichungen.

4.1.3 Abgereichertes Uran mit Deuterium-Deuterium Neutronengenerator

Abbildung 4.4 zeigt das Spektrum des abgereicherten Urans mit dem gepulsten Deuterium-Deuterium Neutronengenerator. Die *Live time* beträgt 6196 Sekunden, das sind gut 103 Minuten und der Anteil der Totzeit 2.0%. Auch hier haben die Neutronenpulse eine Länge von 100 μ s und werden alle 1000 μ s abgestrahlt, wobei der Germaniumdetektor kontinuierlich gemessen hat. Im gemessenen Spektrum sind eine ganze Reihe von Peaks zu erkennen, sowohl passive im nieder-energetischen, als auch Neutroneneinfangspeaks im höher-energetischen Messbereich. Der nieder-energetische Bereich wird von einem Protactinium-234m Peak bei 1001 keV dominiert, einem Zerfallsprodukt von Uran-238. Daneben sind noch einige weitere Peaks, wie der Paarvernichtungspeak bei 511 keV und der Thallium-208 Peak bei 2614 keV identifizierbar. Der insgesamt mit Abstand größte Peak entsteht durch Neutroneneinfang in Wasserstoff und liegt bei 2223 keV. Er ist so groß, dass sowohl sein *Single*- als auch sein *Double-Escape* Peak noch gut sichtbar sind. Im Energiebereich über 3000 keV, in dem auch die Neutroneneinfangslinien von Uran liegen, sind vor allem Peaks von Kohlenstoff-12 und Eisen-56, sowie teilweise auch deren *Escape* Linien erkennbar. Bei circa 7123 keV liegt ein weiterer Peak mit seinem *Escape* Peak bei 6612 keV. Dieser Peak stammt vermutlich von Molybdän-92, die anderen Isotope, die Linien bei dieser Energie haben, konnten über das Verhältnis der Zählraten ausgeschlossen werden. Molybdän wird verwendet um Stahl zu härten, es ist schlüssig, dass es hier zusammen mit Eisen-56 gemessen wird. Uranlinien sind dagegen nicht zu erkennen, auch nicht die stärksten Uran-238 Linien bei 4060 keV und 3583 keV.

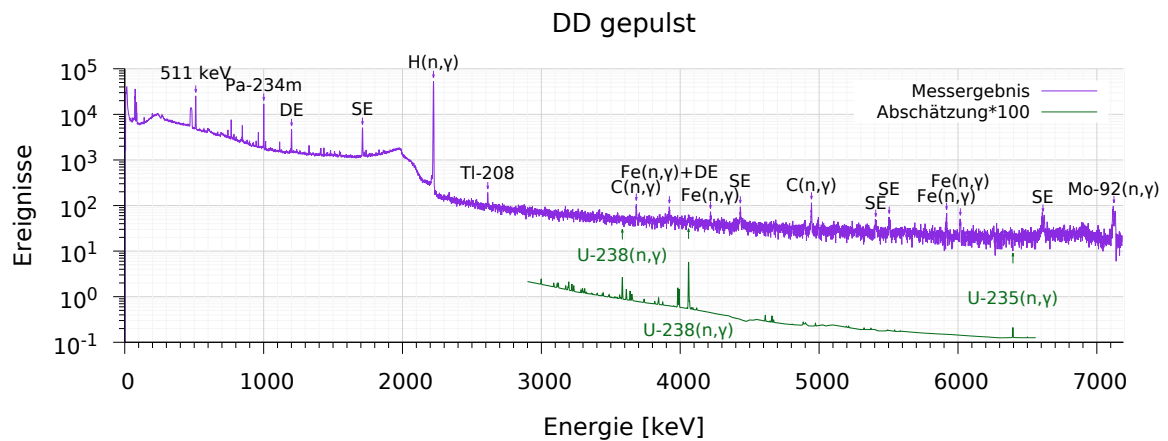


Abbildung 4.4 – Gammaspektrum des angereicherten Urans, gepulst bestrahlt mit Neutronen aus dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator, aufgenommen am 29.06.2015 ab 13⁴⁷ Uhr, die *Live time* beträgt 6196 Sekunden, der Totzeit-Anteil 2.0 %. Zusätzlich zu der Messkurve (lila) ist die entsprechende analytische Abschätzung (grün) dargestellt, die mit dem Faktor 100 multipliziert wurde.

Dies deckt sich mit der analytischen Abschätzung für einen Deuterium-Deuterium Neutronengenerator mit einer Neutronenflussdichte von $2 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ am Ort des Targets und einer Bestrahlungszeit von 619.6 Sekunden. Der Strahlungshintergrund der Messung ist über zwei Größenordnungen höher, als das erwartete PGAA Signal des angereicherten Urans, weshalb das Ergebnis der analytischen Abschätzung in Abbildung 4.4 um einen Faktor 100 verstärkt aufgetragen ist.

Wird der Deuterium-Deuterium Neutronengenerator kontinuierlich betrieben, entspricht die Messzeit der Bestrahlungszeit und es wird zu keinem Zeitpunkt nur verzögerter Untergrund gemessen. Das Spektrum wurde 967 Sekunden lang aufgenommen (*Live time*), gut 16 Minuten und der Anteil der Totzeit beträgt 2.6 %. Es sieht sehr ähnlich wie das mit dem gepulsten Deuterium-Deuterium Neutronengenerator aufgenommene Spektrum aus und hat alle Peaks die schon im vorhergehenden Abschnitt diskutiert wurden. Hier ist allerdings bei 4060 keV zumindest die Andeutung eines Peaks erkennbar. Im gemessenen Spektrum ist keine Uran-235(n, γ)-Linie auszumachen. Abbildung 4.5 zeigt oben das gesamte Spektrum, in der Mitte einen Ausschnitt von 2950 keV bis 6500 keV und unten ein Ausschnitt von 4000 keV bis 4150 keV.

Im kontinuierlichen Betrieb emittiert der Deuterium-Deuterium Neutronengenerator $1 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ Neutronen. Mit Formel 4.1 ergibt sich daraus eine Neutronenflussdichte von $1 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ am Ort des Targets. Die entsprechende analytische Abschätzung für eine Bestrahlungszeit von 967 Sekunden ist in Abbildung 4.5 jeweils in grün aufgetragen. Der aktive Untergrund ist über eine Größenordnung höher als die Abschätzung. Für eine bessere Darstellung ist letztere deshalb um einen Faktor 10 verstärkt abgebildet. Der Uran-238 (n, γ)-Peak bei 4060 keV ist der stärkste zu erwartende Peak.

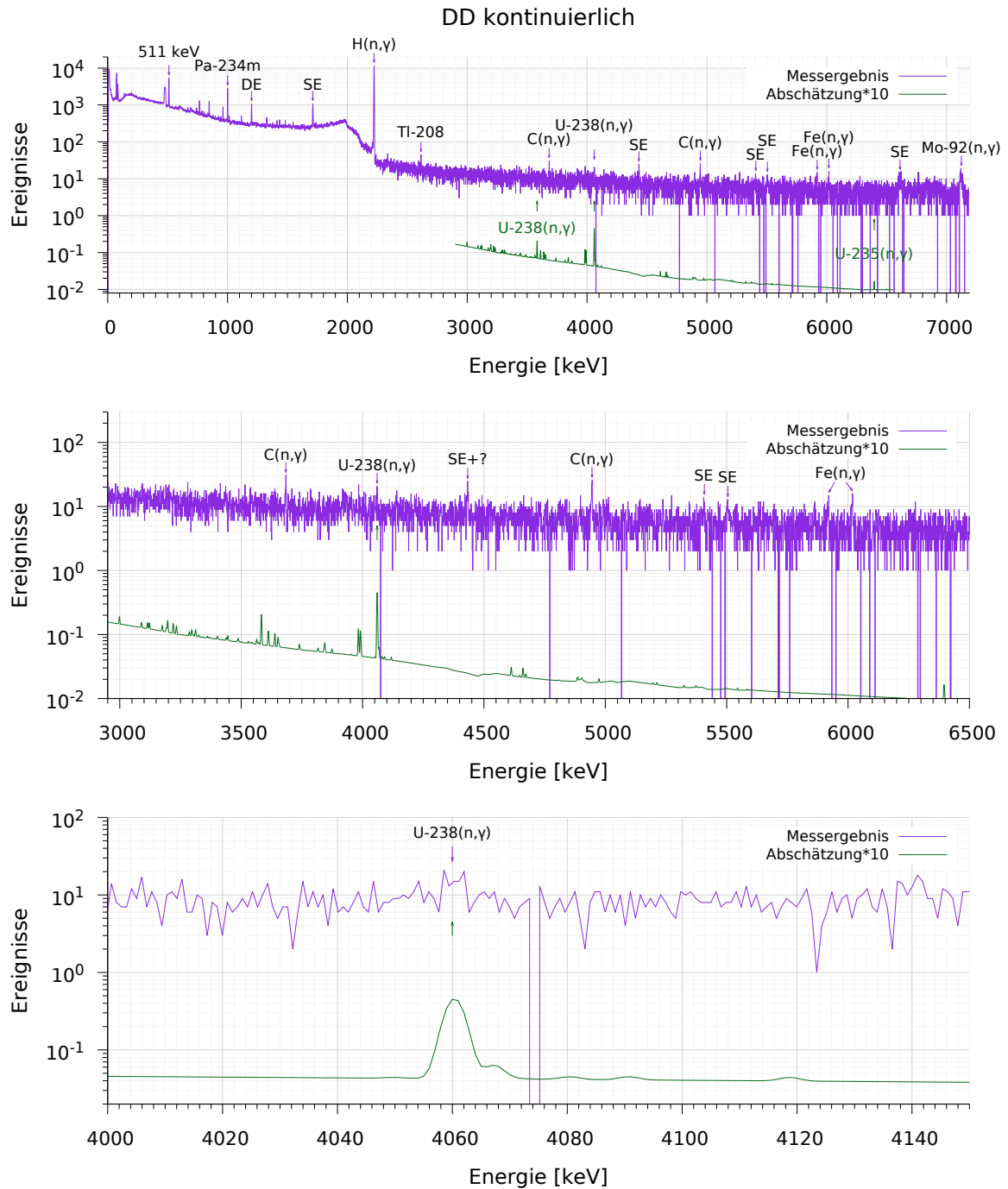


Abbildung 4.5 – Gammaspektrum des abgereicherten Urans, kontinuierlich bestrahlt mit Neutronen aus dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator, aufgenommen am 29.06.2015 ab 16⁰⁵ Uhr, die *Live time* beträgt 967 Sekunden, der Totzeit-Anteil 2.6 %. Oben ist das gesamte aufgenommene Spektrum von 0 bis 7191 keV abgebildet, in der Mitte ein Ausschnitt von 2950 keV bis 6500 keV und unten ein Ausschnitt von 4000 keV bis 4150 keV. Zusätzlich zu der Messkurve (lila) ist die mit dem Faktor 10 multiplizierte analytische Abschätzung (grün) dargestellt.

4.1.4 Zwischenfazit: Abgereichertes Uran und Neutronengeneratoren

Wie erwartet eignet sich der Deuterium-Deuterium Neutronengenerator deutlich besser für Neutroneneinfangmessungen als der mit Deuterium-Tritium betriebene. Die 14 MeV Neutronen des Letzteren sind deutlich schwerer zu moderieren und die schnellen Neutronen schauen zwar tiefer in das Spaltmaterial, die Neutroneneinfangwechselwirkungsquerschnitte sind allerdings so niedrig, dass die Neutroneneinfangsgammas nicht zu erkennen sind, weder im gepulsten noch im kontinuierlichen Modus, wobei der Germaniumdetektor in beiden Fällen kontinuierlich gemessen hat.

Auch mit dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator konnten mit dieser vergleichsweise simplen Versuchsanordnung keine Gammalinien aus Neutroneneinfängen in Uran identifiziert werden. Die Neutronenflussdichten am Ort des Targets sind mit den verwendeten Neutronengeneratoren so gering, dass der aktive Hintergrund eine bis mehrere Größenordnungen über dem zu erwartenden Signal aus den Neutronenfängen im Uran liegen. Bei waffengrädigem Spaltmaterial ist darüber hinaus mit einem höheren Spaltuntergrund zu rechnen.

Unabhängig von den Ergebnissen konnten wertvolle Erfahrungen in der Durchführung von PGAA Experimenten gesammelt werden.

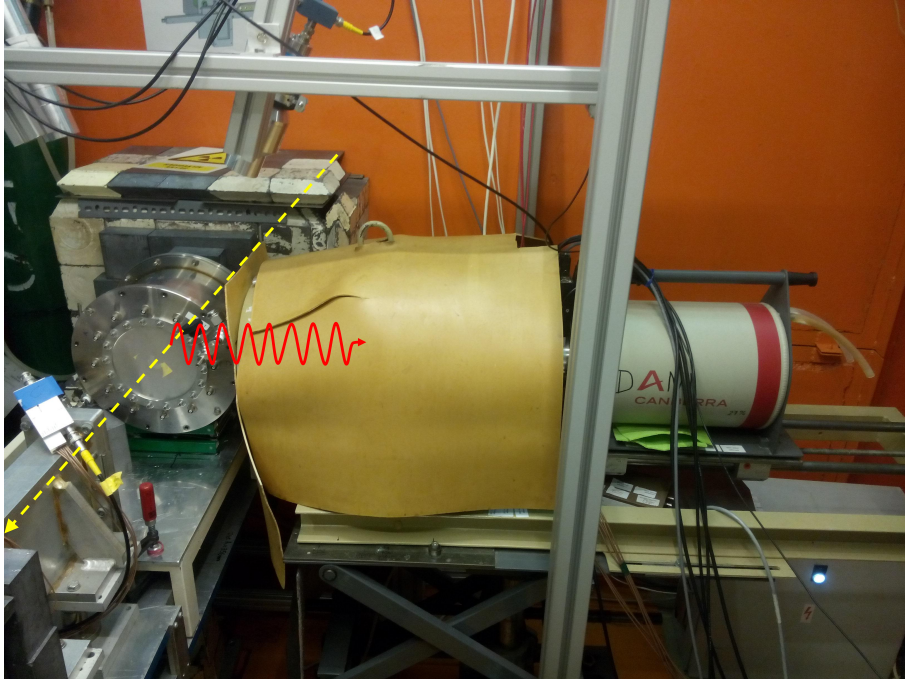


Abbildung 4.6 – Photographie der Versuchsanordnung am *Budapest Neutron Center*. Der Verlauf des Neutronenstrahls aus dem Kern des Forschungsreaktors ist in gelb angedeutet und die im Target entstehende Gammastrahlung in Richtung des Germaniumdetektors in rot. Am Schnittpunkt der beiden -innerhalb der zylindrischen Spaltkammer aus Edelstahl- befindet sich das Plutonium-239 Target. Das Aluminiumgerüst hält die Lanthanbromid Detektoren des anderen Experiments.

4.2 Plutonium-239 und Forschungsreaktor

4.2.1 Versuchsanordnung

Die Messungen mit Plutonium-239 und kalten Neutronen aus einem Forschungsreaktor wurden am *Budapest Neutron Center* in Budapest, Ungarn durchgeführt. Der Forschungsreaktor hat eine thermische Leistung von 10 MW und der maximale thermische Neutronenfluss beträgt $2 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$ [156, 157]. Der Reaktor wurde 2009 auf Brennstoff mit einem Uran-235 Anreicherungsgrad von 19.75 % umgestellt, bis dahin hatte das Uran in den Brennstäben eine Uran-235 Anreicherung von 36 %. Diese Entwicklung ist sehr begrüßenswert aus Sicht der Nicht-Verbreitung, da von hoch-angereichertem Uran (HEU) auf niedrig angereichertes Uran (LEU) umgestellt wurde.

Die Plutonium-239 Versuchsanordnung wurde am Ende eines Neutronenleiters aufgebaut. Die thermische Äquivalenz-Neutronenflussdichte betrug am Experimentierplatz $5 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$. In Abbildung 4.6 ist der Strahlengang der Neutronen mit dem gelben, gestrichelten Pfeil schematisch dargestellt. Das Plutonium-239 Target hat eine Reinheit von 99.97 %, eine Masse von $(429.3 \pm 1.8) \mu\text{g}$ und eine Aktivität von $(986 \pm 4) \text{ kBq}$. Das Target hat einen Durchmesser von 2 cm und ist so dünn, dass es auf eine Aluminiumscheibe aufgebracht ist, da es sonst nicht stabil wäre. Es befindet sich in der Mitte einer Ionisationskammer aus Edelstahl, da es sich um

die Erweiterung eines bereits geplanten Experiments zu Spaltgammas handelt. Das Prinzip dieses von Stephan Oberstedt, Angélique Gatera, Andreas Oberstedt und ihren Kollegen durchgeführten Experiments (Englisch: Prompt Fission Gamma-ray Spectroscopy, PFGS) wird zum Beispiel in [158] ausführlich erläutert. Dieses andere Experiment verwendete vier Lanthanbromid Detektoren, die mit einem Aluminium Gerüst in 40 cm Abstand vom Target gehalten werden; zwei von ihnen sind in Abbildung 4.6 oben links zu sehen. In dem Target entstand die Gammastrahlung, deren in Richtung des Germaniumdetektors strahlender Anteil in Abbildung 4.6 mit dem roten Pfeil symbolisiert wird. Der Aufbau befand sich in einer großen Halle, wodurch die Rückstreuung von Neutronen in den Germaniumkristall reduziert wurde.

Der Gammadetektor ist ein n-Type *Canberra GR2318/S*; der hoch-reine Germaniumkristall hat ein Volumen von 110 cm^3 bei einem Durchmesser von 5.1 cm und einer Länge von 5.5 cm, seine relative Effizienz beträgt 23 % [159]. Die Effizienz und die Energie des Detektors wurden mit bekannten Quellen kalibriert. Für die Energiekalibrierung hat sich mit Europium-152 bei 1408 keV, mit Cobalt-60 bei 1334 keV, mit Bismuth-207 bei 1064 keV und mit Barrium-133 bei 356 keV eine lineare Beziehung ergeben. Bei der Analyse wurde die Energiekalibrierung mit den Neutroneneinfangzerfallslinien von Eisen bei 7646 keV und 7631 keV, sowie den Gammaquanten der e^-e^+ Paarvernichtung bei 511 keV angepasst.

Der Compton Hintergrund wird unterdrückt, indem ein Szintillator aus dem Germaniumkristall austretende Strahlung detektiert und in Anti-Koinzidenz geschaltet ist [159]. Der Szintillator besteht aus Bismutgermanat (BGO), einer Verbindung von Bismut, Germanium und Sauerstoff. Um die Detektoren vor den Neutronen zu schützen, sind sie durch zusätzliches Lithium-6 Polymer und 10 cm Blei abgeschirmt, erstere sind die ockerfarbenen Platten in Abbildung 4.6. Der Detektorkristall hat einen Abstand von (15.5 ± 0.1) cm zum Lithium-6 Polymer und dieses wiederum einen Abstand von (14.8 ± 0.1) cm zum Plutonium-239 Target. Damit ergibt sich ein Abstand von (30.3 ± 0.2) cm zwischen Target und Detektor.

4.2.2 Hintergrund

Abbildung 4.7 zeigt das aktive Hintergrundspektrum für den Messaufbau ohne das Plutonium-239 Target. Die *Live time* beträgt 61 250 Sekunden, das entspricht ziemlich genau 17 Stunden und wurde am 26.11.2015 ab 16⁴⁰ Uhr aufgenommen. Das Hintergrundspektrum hat eine sehr große Anzahl an sichtbaren Peaks. Alle in Abbildung 4.7 beschrifteten Peaks außer dem e^-e^+ Paarvernichtungspeak bei 511 keV sind Neutroneneinfangspeaks. Der Übersichtlichkeit wegen wurde bei der Beschriftung auf das Suffix (n, γ) und wo sinnvoll auf die Benennung des Isotops verzichtet. Alle Aluminiumpeaks gehen auf Neutroneneinfänge im Isotop Aluminium-27 zurück, alle nicht weiter spezifizierten Eisenpeaks auf Neutroneneinfänge im Isotop Eisen-56. Das Spektrum wird dominiert von zwei Eisen-56(n, γ)-Peaks bei 7632 keV und 7646 keV und auch viele schwächere Neutroneneinfangslinien von Eisen-56 sind zu erkennen; die nächst-stärksten bei 3266 keV, 3412 keV, 3436 keV, 4217 keV, 5920 keV und 6018 keV sind in Abbildung 4.7 beschriftet, aber auch darüber hinaus lassen sich etliche Eisen-56(n, γ)-Peaks zuordnen; so zum Beispiel bei 4406 keV und 4809 keV. Das Eisen-56 stammt aus dem Probenhalter und der Spaltkammer, genau

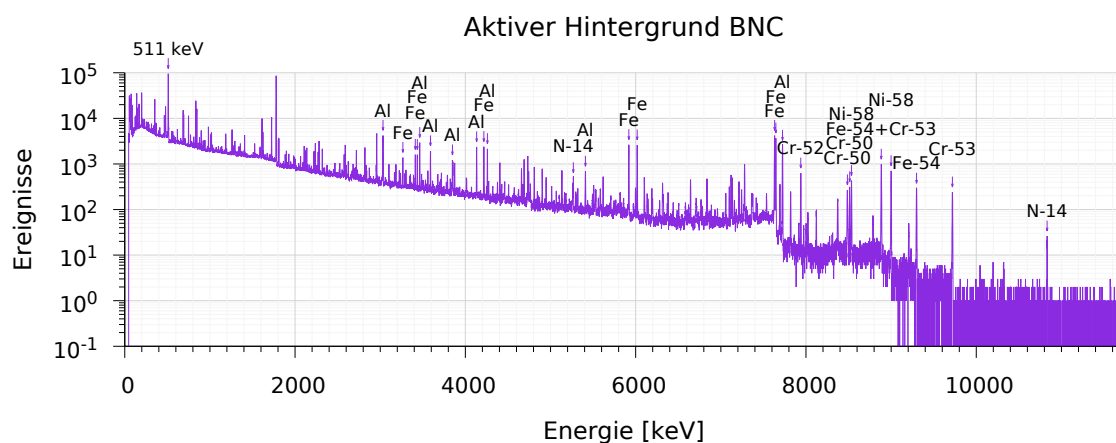


Abbildung 4.7 – Aktives Hintergrundspektrum mit der Ionisationskammer im Neutronenstrahl des BNC Forschungsreaktors, aufgenommen am 26.11.2015 ab 16⁴⁰ Uhr, die *Live time* beträgt 61 250 Sekunden, der Totzeit-Anteil 1.0 %. Außer dem Paarvernichtungspeak stammen alle bezeichneten Peaks von Neutroneneinfangsgammas, *Al* steht für Aluminium-27 und *Fe* für Eisen-56.

wie das Eisen-54 mit seinen (n, γ) -Peaks bei 8884 keV und bei 9298 keV, das Nickel-58 mit seinen (n, γ) -Peak bei 8534 keV, das Chrom-50 mit seinen (n, γ) -Peaks bei 8487 keV und bei 8513 keV, das Chrom-52 mit seinem (n, γ) -Peak bei 7939 keV, das Chrom-53 mit seinen (n, γ) -Peaks bei 8884 keV und 9719 keV und das Aluminium-27. Das Aluminium-27 hat, ähnlich wie das Eisen-56, (n, γ) -Peaks in dem gesamten Energiebereich, in dem die betrachteten Neutroneneinfangslinien von Plutonium-239 und Plutonium-240 liegen: von 3.6 MeV bis 6.5 MeV; unter anderem bei 3590 keV, 3848 keV, 4132 keV, 4259 keV, 5410 keV und 7724 keV. Dazwischen liegen noch weitere, schwächere Aluminium-27(n, γ)-Linien, zum Beispiel bei 6101 keV und 6316 keV. Die Stickstoff-14(n, γ)-Peaks bei 5268 keV und 10 831 keV lassen sich den Stickstoffanteil der gewöhnlichen Luft zurückführen, mit dem die Ionisationskammer während der Hintergrundmessung gefüllt war.

Weitere Informationen zum aktiven und passiven Hintergrund an diesem Messplatz sind in einem Artikel der *Budapest Neutron Center* Gruppe von 2005 publiziert [160]. Die dort publizierten Ergebnisse konnten durch die hier vorgestellten Messungen reproduziert werden.

4.2.3 Plutonium-239

Für die Messung mit dem Plutonium-239 Target wurde das Signal der Kathode der Ionisationskammer für den Neutroneneinfangsaufbau als Spalttrigger genutzt. Es wurde als zusätzliches Signal in die Anti-Compton Logik eingespeist, wodurch im Folgenden nicht mehr nur der Compton-Hintergrund, sondern auch die Gammas aus Spaltereignissen nicht mit aufgezeichnet wurden. Um die Fliegezeit der Spaltprodukte zur Kathode zu minimieren, wurde die Ionisationskammer mit dem Zählgas Argon-40 mit 10 % Tetrafluormethan (CF_4) befüllt.

Es wurden nacheinander mehrere Messungen aufgenommen, ohne dass die Ver-

#	<i>live time</i>		<i>true time</i>	Totzeit %	Start	
	s	dd:hh:mm:ss	s		Datum	Uhrzeit
AT89	230 980	16:09:40	233 164	0.9	20.11.2015	16:45
AT90	88 287	00:31:27	89 133	0.9	23.11.2015	09:47
AT91	86 864	00:07:44	87 698	1.0	24.11.2015	10:54
AT92	15 428	04:17:08	15 575	0.9	25.11.2015	11:26
AT93	62 857	17:27:37	63 457	0.9	25.11.2015	15:51
Kumuliert	484 416	05:14:33:36	489 027	0.9	-	-
Hintergrund	61 250	17:00:50	61 840	1.0	26.11.2015	16:40

Tabelle 4.2 – Übersicht über die fünf Plutonium-239 Messungen, sowie über die kumulierte gesamte Messung mit dem Plutonium-239 Target und über das Hintergrundspektrum am *Budapest Neutron Centre*.

suchsanordnung geändert wurde. Tabelle 4.2 zeigt eine Übersicht über diese fünf Messungen, deren Summe und das Hintergrundspektrum. Die kumulierte *live time* ergibt sich zu 484 416 Sekunden, das sind 134.6 Stunden, also 5.6 Tage; der Anteil der Totzeit an der *true time* beträgt 0.9%.

Abbildung 4.8 zeigt das Ergebnis der kumulierten gesamten Messung zusammen mit der analytischen Abschätzung für den Budapester Forschungsreaktor mit (429.3 ± 1.8) μg Plutonium mit π cm^2 Oberfläche und (99.97 ± 0.01) % Plutonium-239 und (0.03 ± 0.01) % Plutonium-240 Anteil. Oben ist das Spektrum über den gesamten aufgenommenen Energiebereich von 0 bis 11 762 keV abgebildet. Dieses Spektrum sieht dem Hintergrundspektrum in Abbildung 4.7 sehr ähnlich, die Peaks sind allerdings ob der deutlich längeren Messzeit entsprechend ausgeprägter. Es lassen sich fast alle Peaks dem Hintergrund zuordnen: Die meisten Peaks stammen von Aluminium-27 (*Al*) und Eisen-56 (*Fe*), dazu kommen Eisen-54, Nickel-58, Chrom-50, Chrom-52 und Chrom-53. Außer dem e^-e^+ Paarvernichtungspeak bei 511 keV stammen alle beschrifteten Peaks aus Neutroneneinfangsreaktionen, auf das Suffix (n, γ) wurde der Übersichtlichkeit wegen verzichtet. Es kann ein Isotop identifiziert werden, das nicht im Hintergrundspektrum zu sehen ist: Argon-40 mit Neutroneneinfangslinien bei 4745 keV und 5583 keV. Das Argon wurde in der Ionisationskammer als Zählgas verwendet. Entsprechend fehlen die Stickstoff-14 Linien, die im Hintergrundspektrum zu sehen sind, da bei dessen Aufnahme die Ionisationskammer mit normaler Luft gefüllt war.

Der analytischen Abschätzung nach liegt das zu erwartende Gammasignal aus Neutroneneinfängen im Plutonium mehr als eine Größenordnung unter dem gemessenen Spektrum, das vom Untergrund dominiert wird. Das mittlere Spektrum in Abbildung 4.8 zeigt den Energieausschnitt in dem die prompten Gammalinien von Plutonium-239 und Plutonium-240 liegen (von 3600 keV bis 6600 keV) und das untere noch einmal vergrößert den Bereich mit den stärksten Linien (von 5500 keV bis 6000 keV). Die beiden Eisen-56 Linien bei 5921 keV und 6020 keV sind so dominant, dass auch ihre *Single-Escape-Linen* bei 5411 keV und 5508 keV noch deutlich zu erkennen sind. Es sind keine Gammalinien aus Neutroneneinfängen in Plutonium-239 im gemessenen Spektrum zu erkennen, auch nicht mit genauerer Analyse der stärksten erwarteten Neutroneneinfangslinien bei 5934.8 keV, 5573.7 keV, 5594.9 keV und

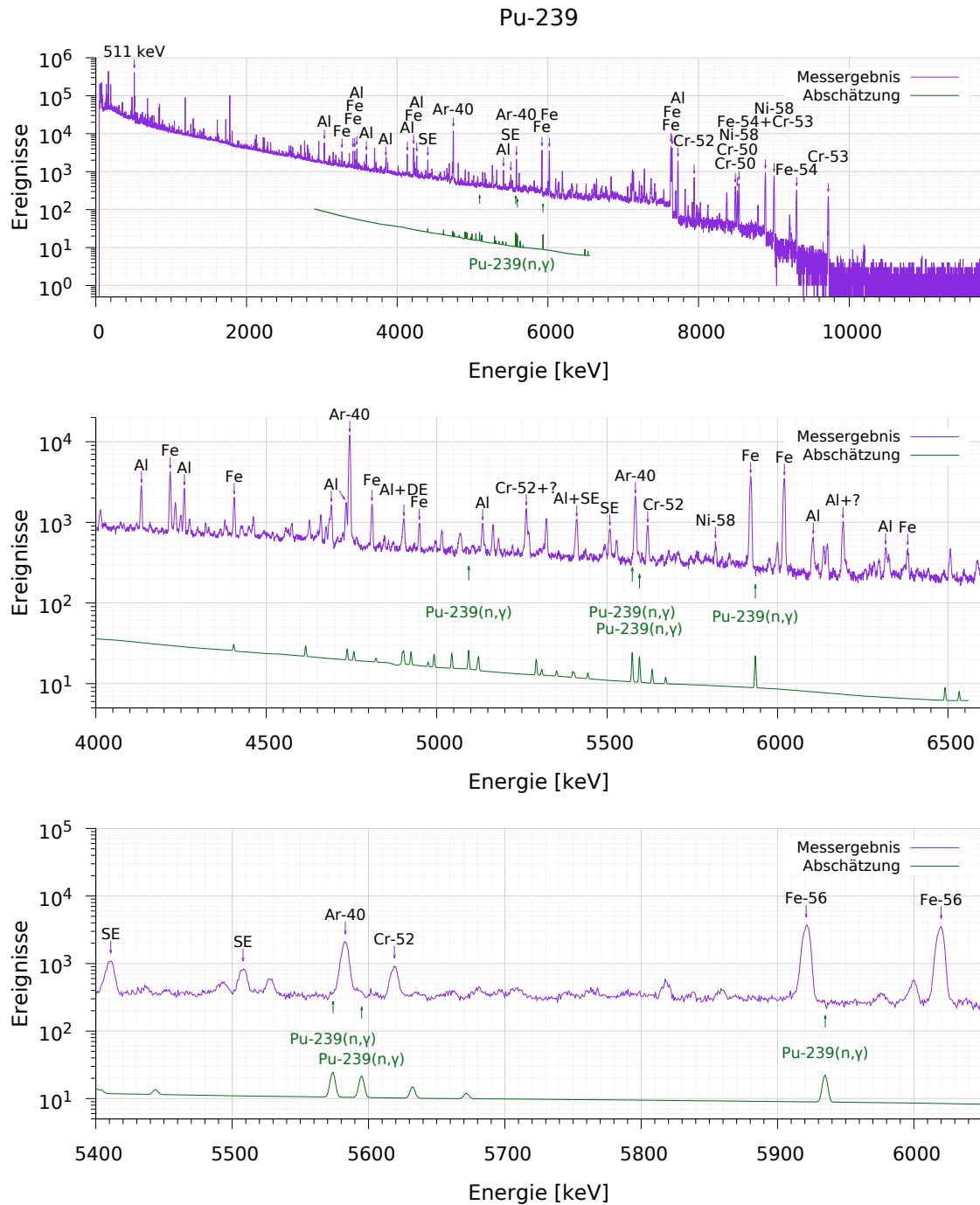


Abbildung 4.8 – Gammaspektrum der Plutonium-239 Probe im Neutronenstrahl des BNC Forschungsreaktors, aufgenommen in fünf Einzelspektren zwischen dem 20. und 26.11.2015, die *Live time* beträgt insgesamt 484 416 Sekunden, der Totzeit-Anteil durchschnittlich 0.9 %. Oben ist das gesamte aufgenommene Spektrum von 0 bis 11762 keV zu sehen, in der Mitte ein Ausschnitt von 4000 keV bis 6600 keV und unten ein Ausschnitt von 5500 keV bis 6000 keV. Zusätzlich zu der Messkurve (lila) ist die analytische Abschätzung (grün) dargestellt.

5093.8 keV (grüne Pfeile). Dies stimmt mit den nach den analytischen Abschätzungen zu erwartenden Intensitäten der Neutroneneinfangslinien überein.

4.2.4 Zwischenfazit: Plutonium-239 und Forschungsreaktor

Es konnten trotz der hohen Neutronenflussdichte keine Neutroneneinfangslinien der Spaltmaterialprobe identifiziert werden. Dies ist auf die sehr kleine Probenmasse zurückzuführen. Stattdessen dominiert der Hintergrund das Spektrum, vor allem der aus Neutroneneinfängen im Probenträger und der Spaltkammer, insbesondere die Isotope Aluminium-27 und Eisen-56. Der gemessene Hintergrund ist um über eine Größenordnung stärker, als die den analytischen Abschätzungen zufolge zu erwartende Neutroneneinfangsignatur des Plutonium-239 Targets.

Es konnten eine Reihe von Isotopen identifiziert werden, die potentiell bekannte Plutonium-239(n, γ)-Linien stören können: Die stärkste Plutonium-239(n, γ)-Zerfallslinie bei 5935 keV durch die Eisen-56(n, γ)-Linie bei 5921 keV; die zweit- und drittstärksten bei 5574 keV und 5595 keV durch die Argon-40(n, γ)-Linie bei 5583 keV. Ob diese Hintergrundpeaks sich störend oder gar prohibitiv auf die Analyse der Plutonium-239 Peaks auswirken hängt von der Auflösung des verwendeten Detektors und dem Verhältnis der Intensitäten ab. Es wäre also vorteilhaft bei solchen Messungen auf große Mengen Argon-40 und Eisen-56 im aktiven Volumen zu verzichten. Ähnliches gilt für Aluminium-27, das sehr viele Neutroneneinfangslinien hat.

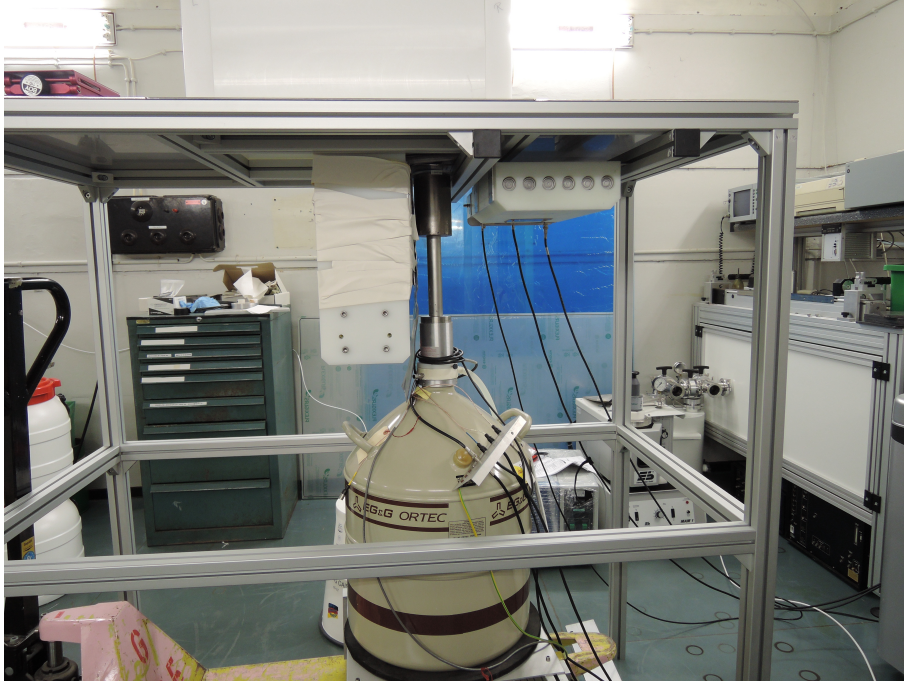


Abbildung 4.9 – Photographie der Versuchsanordnung mit dem Polyethylenkasten (oben); dem HPGe Detektor (mittig); zusätzliches Polyethylen (links davon), Cadmium (links davon) und Blei Abschirmung (oben davon); sowie den sechs Helium-3 Zählrohren. Photographiert von Ludwig Holzleitner, JRC-KRU.

4.3 Radioaktive Neutronenquelle

Das *Joint Research Centre* Karlsruhe (JRC-KRU) ist eine Gemeinsame Forschungsstelle der Europäischen Kommission. Es verfügt über einen großen Vorrat an Spaltmaterial, der unter anderem Kilogramm-Mengen niedrig angereichertes Uran und dreistellige Gramm-Mengen waffengrädiges Uran und Plutonium umfasst.

Das Joint Research Centre Karlsruhe verfügt über keine eigene Neutronenquelle, die stark genug für ein PGAA Experiment ist. Die Radiochemie in München verfügt nicht über Spaltmaterial, aber über eine radioaktive Americium-241/Beryllium Quelle mit einer Neutronenausbeute von $2.2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ insgesamt. Da das Joint Research Centre Karlsruhe nur über eine Umgangsgenehmigung für kleinere radioaktive Quellen verfügte, musste diese erweitert und die Quelle aus München nach Karlsruhe transportiert werden. Für die Erweiterung der Umgangsgenehmigung und für die Strahlenschutzabschätzung für das Experiment konnte auf die analytischen Abschätzungen zurückgegriffen werden.

4.3.1 Versuchsanordnung

Abbildung 4.9 zeigt eine Photographie der Versuchsanordnung. Der Polyethylenkasten mit der Neutronenquelle und dem Spaltmaterial-Target ist in den Aluminium Tisch integriert. Der Germaniumkristall schaut auf den Ort des Spaltmaterials. Es handelt sich um einen koaxialen *ORTEC GEM-50195-S*, mit 50% relativer Effizienz und 1.9 keV Auflösung bei 1.33 MeV. Die Effizienz und die Energie des Detektors

wurden zunächst mit bekannten Quellen kalibriert. Dabei hat sich mit Cobalt-60 bei 1334 keV und mit Natrium-22 bei 1275 keV und mit Mangan-54 bei 835 keV eine lineare Beziehung für die Energiekalibrierung ergeben. Bei der Analyse der aktiven Messungen wurde die Energiekalibrierung mit der Neutroneneinfangzerfallslinie von Wasserstoff bei 2223 keV und den Gammaquanten der e^-e^+ Paarvernichtung bei 511 keV angepasst.

Zur Thermalisierung der schnellen 4.5 MeV Neutronen aus der Americium-241/Beryllium Quelle wurde Polyethylen verwendet. Zusätzlich zum Polyethylen zwischen der Neutronenquelle und dem Spaltmaterial, werden beide komplett von einem Polyethylenkasten umgeben, um durch Rückstreuung die Neutronenflussdichte im Spaltmaterial zu erhöhen und außerhalb des Kastens zu reduzieren. Der hochreine Germaniumkristall des Gammadetektors wurde durch zusätzliches Polyethylen und durch Cadmium direkt vor dem Detektorkristall vor einer zu hohen Neutronenflussdichte geschützt und konnte dadurch sehr nah an das Spaltmaterial herangebracht werden. Um die Totzeit zu reduzieren, wurde er darüber hinaus durch zusätzliches Blei abgeschirmt. Der Polyethylenkasten wurde für das Experiment entworfen und gebaut,¹ genauso wie ein Tisch aus einem Aluminium Gerüst, in den der Polyethylenkasten integriert wurde, sodass sich kein zusätzliches Material zwischen dem Germaniumdetektor und der Spaltmaterial-Probe befand.

Der Abstand zwischen Detektor und Target beträgt 15 cm. Dazwischen befinden sich 10 cm Polyethylen (der Kastenboden) und zusätzlich 21.5 mm Blei, 1 mm Eisen und 1 mm Plastik, wobei letzteres den Detektor vor direktem Kontakt mit der anderen Abschirmung schützt. Die Bleiabschirmung musste hinzugefügt werden, um die Totzeit des Germaniumdetektors zu reduzieren. Sie schwächt die niederenergetische Gammastrahlung signifikant stärker ab, als die hoch-energetische. Links neben dem Germaniumkristall befinden sich 4 mm Blei, 2 Cadmiumplatten und 16 cm Polyethylen. Die beiden Cadmiumplatten bestehen jeweils aus 1 mm Cadmium, das auf beiden Seiten von jeweils 1 mm Aluminium umgeben ist. Für erste Tests wurde zunächst eine deutlich schwächere Neutronenquelle eingesetzt und der Neutronenfluss am Ort des Germaniumkristalls mit einem Neutronendetektor aus sechs Helium-3 Zählrohren kontrolliert.² Dabei wurden die Messergebnisse mit dem Verhältnis der Neutronenausbeuten der beiden Neutronenquellen extrapoliert. Nach diesen Tests wurde der Germaniumdetektor an den vorgesehen Ort, möglichst nahe des Spaltmaterial-Targets gebracht. Alle folgenden vorgestellten Messungen wurden mit dem beschriebenen Aufbau durchgeführt, bei dem sich die Neutronenzählrohre aus Sicht der Neutronenquelle hinter dem Germaniumkristall befinden. Der Neutronendetektor konnte nur im Versuchsraum gesteuert werden und wurde deshalb nach dem Einbringen der starken Americium-241/Beryllium Neutronenquelle nicht mehr genutzt.

Abbildung 4.10 zeigt eine Skizze des Versuchsaufbaus, bei dem die Position der Neutronenquelle (links im Polyethylenkasten, rot) und der Targets zu sehen sind (rechts im Polyethylenkasten, *Probe*). Die Position des Spaltmaterial-Targets ist kor-

¹in Zusammenarbeit mit der werksinternen Werkstatt des JRC-KRU, insbesondere mit Joachim Küst und Jouni Rautio.

²Die Funktionsweise von Helium-3 Zählrohren ist ausführlich in der Literatur beschrieben, zum Beispiel in [76].

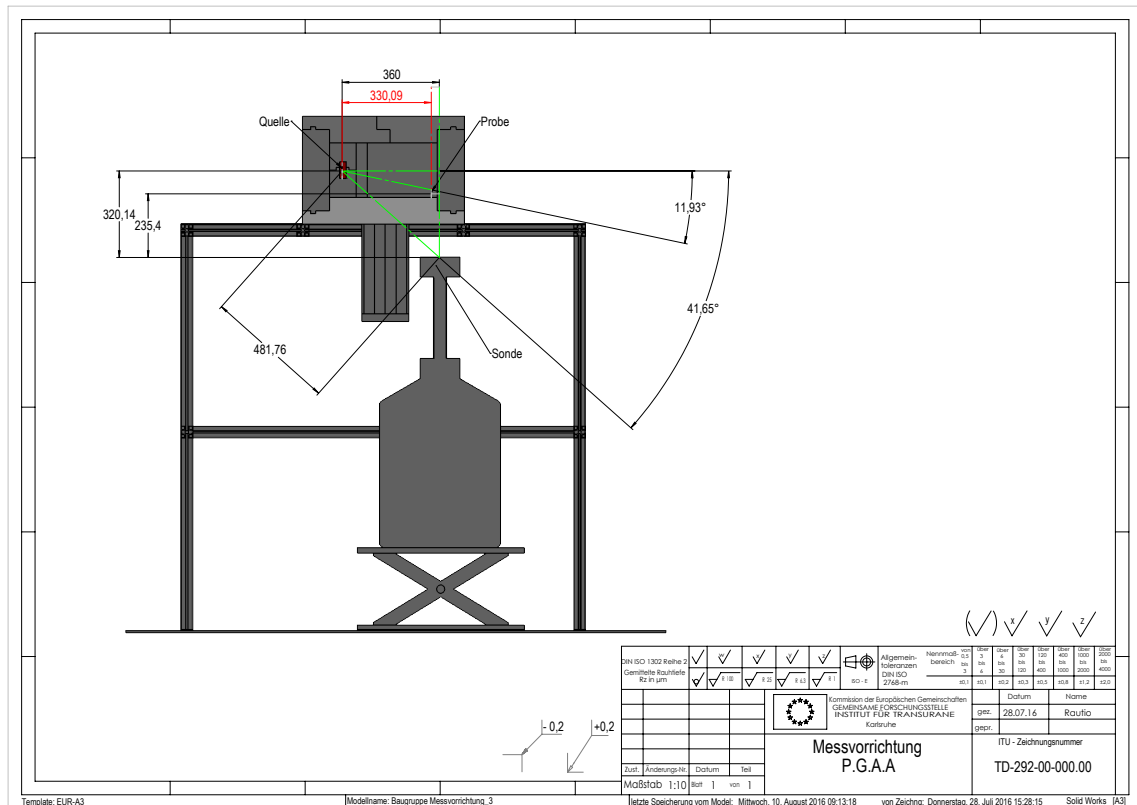


Abbildung 4.10 – Skizze der Versuchsanordnung mit dem Ort der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle, der Spaltmaterial-Proben und des HPGe Detektors (*Sonde*), sowie dem umgebenden Polyethylenkasten und dem Versuchstisch. Angefertigt von Jouni Rautio, JRC-KRU.

rekt eingezeichnet, der genaue Abstand zur Neutronenquelle hängt aber trotzdem von der Probengeometrie selbst ab. Die kleinen Targets konnten genau am eingezeichneten Ort liegen. Die größeren Spaltmaterial-Proben dagegen konnten nicht dort zentriert werden, da die Kastenwand den verfügbaren Raum begrenzte und die Probe in Richtung der Neutronenquelle ausweichen musste. Dies gilt in geringerem Maße auch für den Abstand zum Germaniumdetektor, da sich so das aktive Volumen aufgrund der geringen mittleren freien Weglängen der Neutronen im Spaltmaterial in Richtung der Neutronenquelle verschiebt.

Die Wandstärke des Polyethylenkastens beträgt in alle Richtungen 10 cm. Die Außenmaße des Kastens betragen $60 \text{ cm} \times 40 \text{ cm} \times 40 \text{ cm}$ (Breite \times Höhe \times Tiefe), vergleiche Abbildung A.3 im Anhang; die Innenmaße $40 \text{ cm} \times 20 \text{ cm} \times 20 \text{ cm}$ (BHT), siehe Abbildung A.4 im Anhang. Die Neutronenquelle befindet sich in einem zylindrischen Stahlcontainer, der 6 cm hoch ist und einen Durchmesser von 3 cm hat. Für diesen Stahlcontainer wurde eine Halterung aus Polyethylen mit den Außenmaßen $10 \text{ cm} \times 20 \text{ cm} \times 20 \text{ cm}$ (BHT) gebaut, in den diese exakt hineinpasst (Abbildung A.4 im Anhang). Damit befinden sich bereits mindestens $(10 \text{ cm} - 3 \text{ cm})/2 = 3.5 \text{ cm}$ und maximal knapp 5 cm Polyethylen direkt zwischen der Neutronenquelle und dem Spaltmaterial. Dies wird noch um insgesamt 7 cm zusätzliches Polyethylen ergänzt, in Form dreier Quader mit einer Fläche von $20 \text{ cm} \times 20 \text{ cm}$ und Dicken von 5 cm,

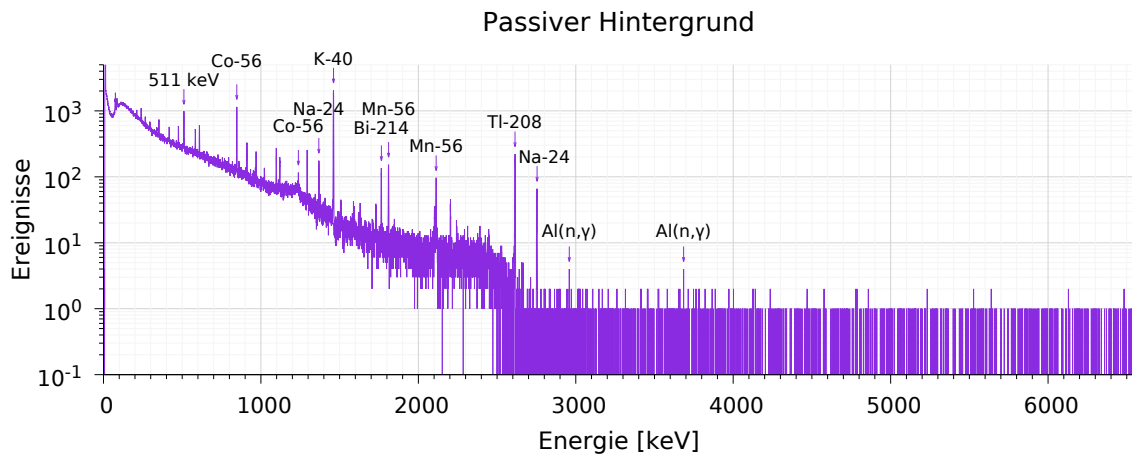


Abbildung 4.11 – Passives Hintergrundspektrum der Versuchsanordnung ohne Americium-241/Beryllium Quelle, aufgenommen am 22.07.2016 ab 10³⁰ Uhr, die *Live time* beträgt 11 163 Sekunden, der Totzeit-Anteil 0.1 %.

1 cm und 1 cm (Abbildung A.5 im Anhang).

Der gesamte Versuchsaufbau befindet sich in einem relativ kleinen Raum mit den Maßen 6.4 m \times 5.5 m. Im Raum entstehende Strahlung wird durch 1.7 m dicke Betonwände zurückgehalten. Der aktive Hintergrund ist entsprechend erhöht. Aus Gründen des Strahlenschutzes wurde die Aufenthaltszeit im Versuchsraum minimiert, solange die Neutronenquelle im Polyethylenkasten lag. Um die Strahlendosis zu minimieren, wurde darauf verzichtet die Neutronenquelle jeden Abend und Morgen umzupacken. Stattdessen verblieb sie während des gesamten Experimentes in dem Polyethylenkasten. Der Versuchsraum, sowie alle umliegenden Räumlichkeiten waren die ganze Woche für Unbefugte gesperrt. Entsprechend mussten alle Vorbereitungen abgeschlossen werden, bevor die Neutronenquelle eingesetzt wurde. Der Computer, mit dem die Gammamessungen gesteuert werden, wurde in einem Nebenraum platziert (abgeschirmt durch eine der 1.7 m dicken Betonwände). Dadurch konnten die Gamma-Messungen von außerhalb gestartet, überwacht und gestoppt werden. Der Raum musste nur zum Wechseln der Spaltmaterial-Targets betreten werden, sowie vom Strahlenschutz zur Überwachung der Ortsdosisleistungen.

Die Neutronenflussdichte am Ort des Targets für die nachträglich durchgeführten analytischen Abschätzungen für diesen Versuchsaufbau ergibt sich mit Formel 4.1 und einem Abstand von $r = 10.5$ cm zu $4.5 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$, vergleiche Unterabschnitte 4.1 und 3.3.2.5.

4.3.2 Hintergrund

Vor, zwischen und nach den Messungen mit dem Spaltmaterial wurden mehrmals der aktive und passive Hintergrund aufgenommen. Abbildung 4.11 zeigt den passiven Hintergrund des Versuchsaufbaus am letzten Tag der Messreihe, nachdem die Americium-241/Beryllium Quelle und alle Spaltmaterial-Targets entfernt wurden. Die um die 0.1% Totzeit korrigierte *Live time* beträgt 11 163 Sekunden (gut drei Stunden). Der stärkste Peak stammt wie zu erwarten von Kalium-40 und liegt bei

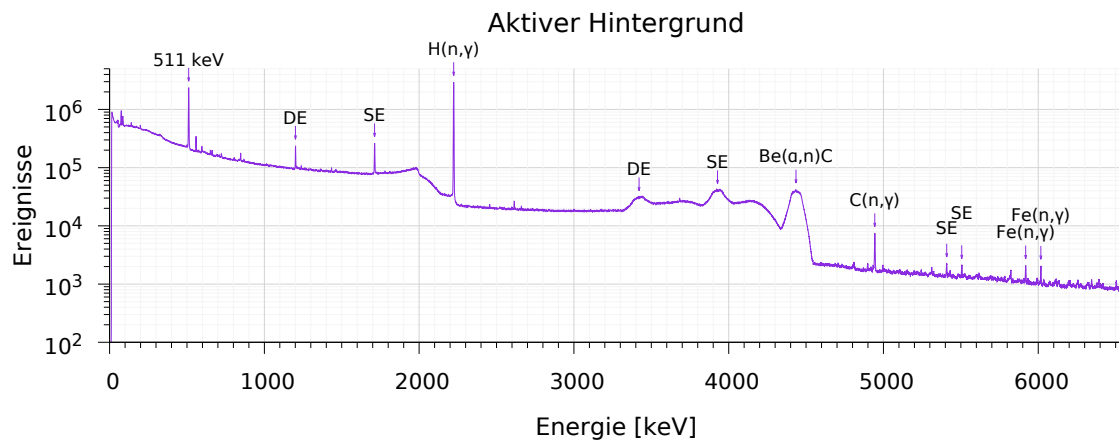


Abbildung 4.12 – Aktives Hintergrundspektrum der Versuchsanordnung mit der Americium-241/Beryllium-Quelle, aufgenommen am 20.07.2016 ab 16¹¹ Uhr, die *Live time* beträgt 51 417 Sekunden, der Totzeit-Anteil 15.1 %.

1461 keV. Auch der Thallium-208 Peak bei 2615 keV und der Vernichtungsstrahlungspeak bei 511 keV sind gut zu erkennen und stimmen sehr gut mit den erwarteten Werten überein. Dies ist wenig überraschend, da die Energiekalibrierung für genau diesen Energiebereich durchgeführt wurde. Oberhalb des Thalliums liegt noch ein Natrium-24 Peak bei 2754 keV, dessen zweite Übergangslinie bei 1368 keV auch gut zu erkennen ist. Bei niedrigeren Energien finden sich noch eine Vielzahl von Peaks: zwei möglicherweise von Mangan-56 bei 2113 keV und 1811 keV; zwei von Cobalt-56 bei 1238 keV und 847 keV; einige von Bismuth-214, unter anderem bei 1765 keV; und viele mehr. Im Energiebereich oberhalb von 3 MeV ist der passive Hintergrund minimal. Zu erahnen sind höchstens zwei Neutroneneinfangs-Gammalinien von Aluminium mit je vier Ereignissen, die von der vorhergehenden Bestrahlung herrühren.

Abbildung 4.12 zeigt den aktiven Hintergrund mit der Americium-241/Beryllium-Quelle und ohne das Spaltmaterial-Target. Das Spektrum wurde über Nacht ab Ende des dritten Versuchstages aufgenommen. Die *Live time* beträgt 51 417 Sekunden (gut 14 Stunden). Der mit Abstand stärkste Peak liegt bei 2223.3 keV und stammt aus einem Zerfall nach Neutroneneinfängen in Wasserstoff. Auch die *Single-* und *Double-Escape*-Linien dieses Photopeaks bei 1712.3 keV und 1201.2 keV sind sehr deutlich zu erkennen, genau wie die Vernichtungsstrahlung bei 511 keV. Im Bereich über 3 MeV dominiert ein sehr breiter Gamma-Peak bei 4435.4 keV, der aus einer α -n-Reaktion im Berylliumanteil der Neutronenquelle stammt. Dabei absorbiert das Beryllium ein α -Teilchen, das vom Americium abgestrahlt wurde und wird zu Kohlenstoff: $\text{Be-9}(\alpha, n)\text{C-12}$, wobei das angeregte Kohlenstoffatom seine überschüssige Energie durch einen Neutronen- und einen Gammazerfall abgibt. Kohlenstoff-12 hat ein Niveau bei exakt 4439 keV [2], die Breite des Peaks ist der α -n-Reaktion geschuldet, vergleiche dazu Abbildung 2 in [129]. Die ebenso breiten Peaks bei 3928.4 keV und 3421.3 keV sind wiederum die *Single-* und *Double-Escape*-Peaks. Oberhalb dieser sehr dominanten Peaks, über 4546 keV gibt es noch eine Reihe weiterer Peaks. Die mit Abstand stärksten sind die Peaks aus Neutroneneinfängen in Kohlenstoff-12 bei 4944.7 keV und in Eisen-56 bei 5919.2 keV und 6017.2 keV. Die *Single-Escape*-Peaks der beiden

Target	Masse g	Pu-239 Anteil wt%	Querschnitt* cm^2	Dicke* cm
Plutoniumdioxid	51 ± 1	93 ± 1	2.57 ± 0.03	1 ± 0.01
Fünf Plutoniumproben	110 ± 1	86 ± 1	8.28 ± 0.08	0.67 ± 0.01
Zwanzig Plutoniumproben	158 ± 1	85 ± 1	24.16 ± 0.24	0.33 ± 0.003

* In Richtung der Neutronenquelle

Tabelle 4.3 – Übersicht der drei Plutonium-Targets, die mit Neutronen der Americium-241/Beryllium Quelle bestrahlt wurden. Das Plutoniumdioxid ist eine einzelne Probe, die anderen beiden sind eine Kombination aus mehreren Proben, deren jeweiligen Gesamtmassen und Gesamt-Plutonium-239 Anteile angegeben sind.

Eisen-56 Neutroneneinfangspeaks sind deutlich bei 5409.2 keV und 5506.2 keV zu erkennen. Der *Single-Escape*-Peak der Kohlenstoff-12 Linie ist bei 4433.7 keV zu erwarten, also mitten im breiten Be-9(α, n)C-12-Peak, der eine entsprechende *Spitze* aufweist. Darüber hinaus sind einige weitere aber deutlich schwächere Peaks zu erkennen, der Peak bei 4810.3 keV stammt zum Beispiel aus einem Neutroneneinfang in Eisen-56.

4.3.3 Plutonium

Drei Plutonium-Targets wurden vermessen, deren wichtigste Charakteristika in Tabelle 4.3 zusammengefasst sind. Zuerst wurde die größte Einzelprobe vermessen, die aus 51 g Plutoniumdioxid besteht. Danach wurde diese Probe mit den vier nächstgrößeren Proben mit hohem Plutonium-239 Anteil zusammen vermessen und abschließend alle zwanzig verfügbaren Plutoniumproben gemeinsam. In Tabelle 4.3 sind nur die Gesamtmassen und Gesamt-Plutonium-239 Anteile aufgeführt, da die genauen Angaben für die einzelnen Proben teilweise vertraulich sind.³ Darüber hinaus sind in der Tabelle auch die in den analytischen Abschätzungen verwendeten Querschnitte und Dicken in Richtung der Americium-241/Beryllium Quelle aufgeführt.

4.3.3.1 Plutoniumdioxid

Die Plutoniumdioxid-Probe hat ein Gesamtgewicht von 51 Gramm und der Plutonium-239 Anteil beträgt circa 93 Gewichtsprozent, das entspricht etwa 47 Gramm Plutonium-239. Das Plutonium ist waffengrädig. Für diese Isotopenzusammensetzung ergibt sich eine mittlere freie Weglänge von 0.02 cm für thermische Neutronen, vergleiche Tabelle 3.3. Die Probe ist aus Sicht der Neutronenquelle mit circa 1 cm deutlich dicker als die mittlere freie Weglänge. Das Plutoniumdioxid Spektrum wurde am 20.07.2016 ab 9³⁰ Uhr aufgenommen und ist in Abbildung 4.13 zusammen mit der entsprechenden analytischen Abschätzung für die thermalisierte Americium-241/Beryllium Quelle und 51 Gramm Plutonium mit 93 % Plutonium-239 und 7 % Plutonium-240, sowie einer Oberfläche von $2.57 cm^2$ und einer Dicke von 1 cm in

³Die genauen Massen und Anteile von Plutonium-239, Plutonium-240 und Plutonium-241 sind dem Autor bekannt.

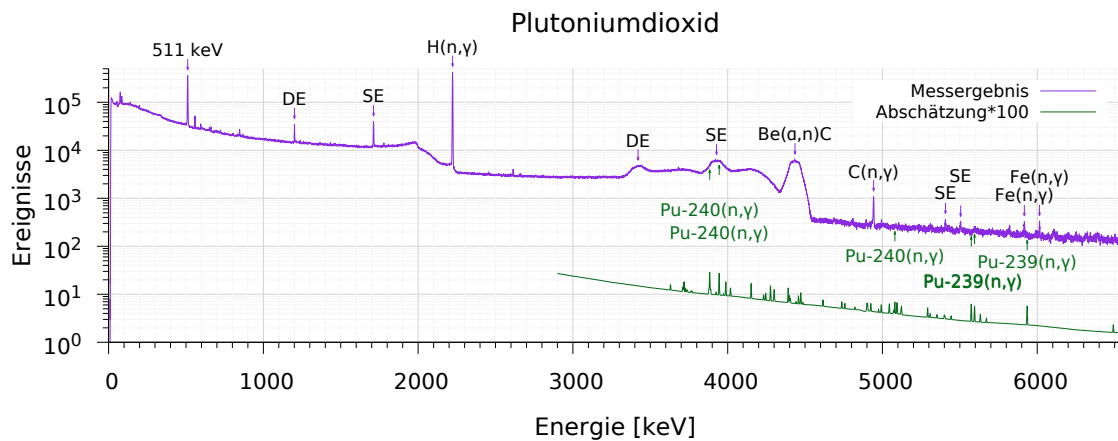


Abbildung 4.13 – Gammasktrum des mit Neutronen der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle bestrahlten Plutoniumdioxids, aufgenommen am 20.07.2016 ab 9³⁰ Uhr, die *Live time* beträgt 7654 Sekunden, der Totzeit-Anteil 15.6 %. Zusätzlich zu der Messkurve (lila) ist das mit einem Faktor 100 multiplizierte Ergebnis der analytischen Abschätzungen (grün) dargestellt.

Richtung der Americium-241/Beryllium Quelle dargestellt. Die Messkurve liegt über drei Größenordnungen über der Abschätzung, um die Übersichtlichkeit zu erhöhen ist das Ergebnis der analytischen Abschätzung mit dem Faktor 100 multipliziert. Der Anteil der Totzeit ist mit 15.6 % ähnlich hoch wie beim aktiven Hintergrundspektrum mit 15.1 %, woran man schon erkennen kann, dass nicht signifikant mehr Strahlung im Germaniumkristall des Gammadetektors registriert worden ist. Die *Live time* für das Spektrum der Plutoniumdioxid-Probe beträgt 7654 Sekunden (gut zwei Stunden).

Wie im aktiven Hintergrundspektrum dominiert auch im Spektrum mit der Plutoniumdioxid-Probe die Neutroneneinfangs-Gammalinie von Wasserstoff bei 2223.3 keV mit ihren *Escape*-Peaks bei 1712.3 keV (*Single-Escape*) und 1201.2 keV (*Double-Escape*) das gesamte Spektrum. Auch der breite Be-9(α, n)C-12 Peak bei 4435.4 keV mit seinen *Escape*-Linien bei 3928.4 keV und 3421.3 keV ist verhältnismäßig gleich stark wie im aktiven Hintergrundspektrum; und auch die Aluminium und Eisen Neutroneneinfangs-Gammalinie sind alle wiederzufinden. Die Plutoniumprobe selbst dagegen hinterlässt keine sichtbaren Spuren im Gammasktrum. In Abbildung 4.13 sind die Orte der stärksten erwarteten Neutroneneinfanglinien in Plutonium mit den grünen Pfeilen bei 3884 keV, 3945 keV und 5080 keV (höchste, alle Plutonium-240), sowie bei 5935 keV, 5574 keV und 5595 keV (Plutonium-239) markiert. Bei diesen Energien lassen sich auch mit weiterer Analyse keine Peaks im gemessenen Spektrum identifizieren. Dieses Ergebnis stimmt mit dem der analytischen Abschätzung überein. Der Abschätzung nach ist der Beitrag an prompter und verzögerter Gammastrahlung aus Neutroneneinfängen im Plutonium selbst bei den erwarteten Peaks weniger als ein Hundertstel zum gemessenen Spektrum.

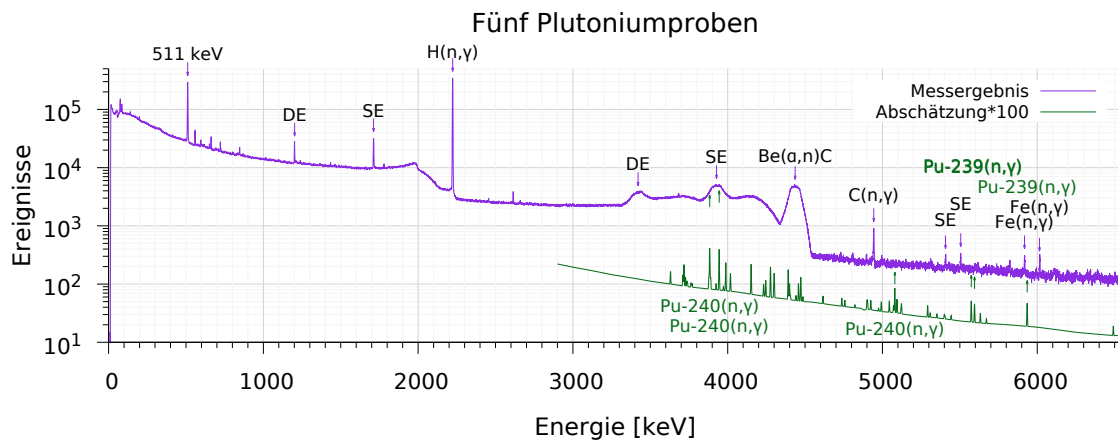


Abbildung 4.14 – Gammaskopogramm der mit Neutronen der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle bestrahlten fünf Plutoniumproben, aufgenommen am 20.07.2016 ab 12⁰³ Uhr, die *Live time* beträgt 6175 Sekunden, der Totzeit-Anteil 16.5 %. Zusätzlich zu der Messkurve (lila) ist das mit dem Faktor 100 multiplizierte Ergebnis der analytischen Abschätzungen (grün) dargestellt.

4.3.3.2 Fünf Plutoniumproben

Für diese Messung wurden zusätzlich zu der Plutoniumdioxid-Probe noch vier weitere Plutoniumproben mit etwas niedrigeren Plutonium-239 Anteilen hinzugefügt. Drei dieser Proben bestehen auch aus Plutoniumdioxid, eine aus metallischem Plutonium. Diese vier Proben sind deutlich kleiner als die erste und in der Summe nur geringfügig größer, sodass sich insgesamt circa eine doppelte Probenmasse von 110 g ergibt, vergleiche Tabelle 4.3. Die fünf Proben wurden nebeneinander angeordnet, sodass sich deren Gesamtoberfläche in Richtung der Neutronenquelle im Vergleich zur Plutoniumdioxid-Probe ungefähr verdreifacht. Der Gesamtanteil an Plutonium-239 ist mit 86 % kleiner als bei der ersten Plutoniumdioxid-Probe und nicht mehr waffengrädig. Durch den geringeren Plutonium-239 und den höheren Plutonium-240 Anteil ist die mittlere freie Weglänge mit 0.03 cm etwas größer als bei der Plutoniumdioxid-Probe. Die *Live time* beträgt 6175 Sekunden, also etwa eine Stunde und 42 Minuten und der Anteil der Totzeit ist mit 16.5 % etwas höher als bei der Plutoniumdioxid-Probe.

Das Spektrum dieser fünf Plutoniumproben in Abbildung 4.14 sieht fast identisch zu dem der Plutoniumdioxid-Probe aus, da auch hier das Target nicht signifikant zum gemessenen Spektrum beiträgt, siehe fehlende Peaks bei den grünen Pfeilen für Plutonium-240 bei 3884 keV, 3945 keV und 5080 keV, sowie für Plutonium-239 bei 5935 keV, 5574 keV und 5595 keV. Stattdessen dominiert der Hintergrund, vor allem der aktive Hintergrund, der in Abschnitt 4.3.2 ausführlich beschrieben ist. Das Ergebnis der analytische Abschätzung für die thermalisierte Americium-241/Beryllium Quelle und 110 Gramm Plutonium (86 % Plutonium-239 und 14 % Plutonium-240) mit einer Oberfläche von 8.28 cm² und einer Dicke von 0.67 cm in Richtung der Americium-241/Beryllium Quelle ist in Abbildung 4.14 als grüne Kurve dargestellt. Der aktive Hintergrund ist so dominant, dass der analytisch abgeschätz-

te Beitrag zum gemessenen Spektrum auch in den stärksten Peaks von Plutonium-240 bei 3884 keV und von Plutonium-239 bei 5935 keV weniger als ein Hundertstel der Zählrate beiträgt, weshalb er in der Abbildung mit dem Faktor 100 multipliziert wurde.

4.3.3.3 Zwanzig Plutoniumproben

Diese Plutoniumprobe besteht aus 20 Einzelproben: dem Plutoniumdioxid, den vier zusätzlichen Plutoniumproben aus dem vorhergehenden Abschnitt und 15 weiteren Plutoniumproben. Die Massen der 15 zusätzlichen Plutoniumproben sind wiederum in Summe ungefähr so groß wie die Plutoniumdioxid-Probe und die vier zusätzlichen Plutoniumproben aus dem vorhergehenden Abschnitt. Die Gesamt-Plutonium-Masse ergibt sich zu circa 158 g, siehe Tabelle 4.3. Die zwanzig Proben wurden alle nebeneinander angeordnet, sodass deren Gesamtoberfläche in Richtung der Neutronenquelle ungefähr neunmal so groß ist wie die der einzelnen Plutoniumdioxid-Probe. Der Plutoniumanteil ist mit 85 % fast genauso groß wie bei den fünf Plutoniumproben und auch nicht waffengrädig. Der Anteil der Totzeit ist wie bei einer größeren Probe zu erwarten mit 17.9 % größer als bei den kleineren und die *Live time* beträgt 5367 Sekunden (knapp 1.5 Stunden).

Es sind keine Neutroneneinfangslinien von Plutonium eindeutig zu erkennen, siehe grüne Pfeile für Plutonium-240 bei 3884 keV, 3945 keV und 5080 keV, sowie für Plutonium-239 bei 5935 keV, 5574 keV und 5595 keV in Abbildung 4.15. Dies deckt sich mit der vorhergehenden analytischen Abschätzung, bei der die Neutroneneinfangsignatur in Plutonium nur gut ein Hundertstel des aktiven Untergrundes betrug und die bestrahlte Oberfläche der Probe circa ein Drittel kleiner war. Der analytischen Abschätzung für die Americium-241/Beryllium Quelle und 158 g Plutonium mit 85 % Plutonium-239 und 15 % Plutonium-240, sowie einer Oberfläche von 24.16 cm^2 und einer Dicke von 0.33 cm in Richtung der Americium-241/Beryllium Quelle zufolge sind die Zählraten über eine Größenordnung kleiner als die der Messung. Sie sind in den Abbildungen 4.15 und A.6 mit dem Faktor 10 multipliziert dargestellt, um die Übersichtlichkeit zu erhöhen. Oben ist jeweils der gesamte Energiebereich von 0 bis 6550 keV abgebildet, in der Mitte der für die prompte Gamma-Aktivitäts-Analyse von Plutonium wichtige Energiebereich von 4500 keV (darunter dominiert der $\text{Be-9}(\alpha, n)\text{C-12}$ Peak) bis 6550 keV und unten ein Ausschnitt mit den stärksten drei Neutroneneinfangslinien von Plutonium-239 von 5500 keV bis 6000 keV. Im Anhang in Abbildung A.6 ist außerdem der Energiebereich von 5000 keV bis 5200 keV wiedergegeben, in dem der 5080 keV Plutonium-240 Einfangpeak liegt.

Nur bei 5598.3 keV ist ein schwacher und relativ breiter Peak zumindest andeutungsweise zu erkennen. Der Übergang bei 5594.9 keV hat aber nur die drittstärkste Intensität und da bei den beiden erwarteten stärksten Übergängen keine Peaks zu sehen sind, ist nicht zu erwarten, dass der Beitrag von Neutroneneinfängen in Plutonium-239 stammt. Auch das Ergebnis der analytischen Abschätzung spricht dagegen, da die abgeschätzte Neutroneneinfangsignatur deutlich über eine Größenordnung kleiner ist als der gemessene aktive Hintergrund. Tatsächlich handelt es sich bei dem Peak bei 5598.3 keV um den *Single-Escape* Peak des Germanium-73(n, γ)-Photopeaks bei 6109 keV (ganz rechts in Abbildung 4.15), der deutlich ausgeprägter

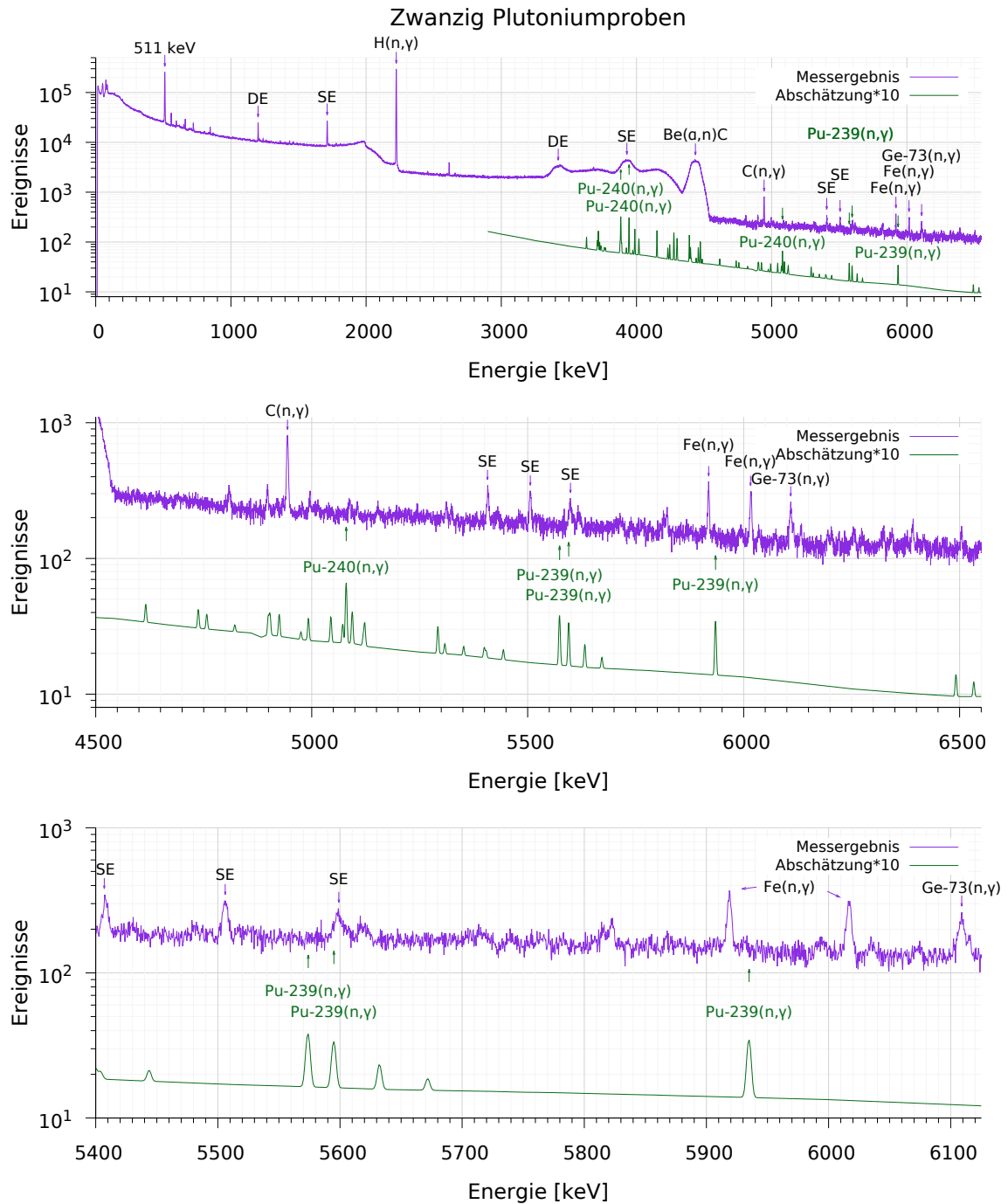


Abbildung 4.15 – Gammaspektrum der mit Neutronen der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle bestrahlten zwanzig Plutoniumproben, aufgenommen am 20.07.2016 ab 14¹¹ Uhr, die *Live time* beträgt 5367 Sekunden, der Totzeit-Anteil 17.9%. Oben ist das gesamte aufgenommene Spektrum von 0 bis 6550 keV, in der Mitte ein Ausschnitt von 4500 keV bis 6550 keV und unten ein Ausschnitt von 5500 keV bis 6000 keV zu sehen. Zusätzlich zu der Messkurve (lila) ist das mit dem Faktor 10 multiplizierte Ergebnis der analytischen Abschätzung (grün) dargestellt.

Target	Masse g	Uran-235 Anreicherung wt%	Querschnitt * cm^2	Dicke * cm
Urandioxid	707 ± 1	83 ± 1	9.22 ± 0.09	4 ± 0.04
Metallisches Uran	183 ± 1	93 ± 1	9.55 ± 0.10	1 ± 0.01
Triuranooctoxid	2375 ± 1	5 ± 1	20.66 ± 0.21	6 ± 0.06

* In Richtung der Neutronenquelle

Tabelle 4.4 – Übersicht der Uran-Targets, die mit Neutronen der Americium-241/Beryllium Quelle bestrahlt wurden: eine Urandioxid-Probe, eine aus metallischen Uran und eine aus aus Triuranooctoxid.

ist, als in den Spektren des Plutoniumdioxids und der fünf Plutoniumproben, wo er kaum erkennbar ist.

4.3.4 Uran

Mit derselben Versuchsanordnung wurden auch drei Uran-Targets untersucht: Urandioxid, metallisches Uran und Triuranooctoxid. Tabelle 4.4 zeigt eine Übersicht der Massen und der Uran-235 Anreicherungsgrade dieser Proben. Darüber hinaus sind in der Tabelle auch die in den analytischen Abschätzungen verwendeten Querschnitte und Dicken in Richtung der Americium-241/Beryllium Quelle aufgeführt. Als erstes Spaltmaterial nach den Hintergrundmessungen wurde das Urandioxid vermessen, da hier die Sicherheitsanforderungen am höchsten waren: Es musste kontinuierlich von Sicherheitspersonal bewacht werden. Sicherheitsbedenken sind auch der Grund, warum die waffengrädigen Spaltmaterialproben nicht über Nacht gemessen werden konnten, sondern immer wieder in die Tresore zurückgebracht werden mussten. Nach dem Urandioxid wurden zunächst Messungen mit den drei Plutoniumproben vorgenommen, danach mit den metallischen Plutonium und dann mit dem Triuranooctoxid. Abschließend, nach dem Entfernen der Americium-241/Beryllium Quelle wurde der passive Hintergrund aufgenommen. Zwischendurch wurden über Nacht aktive Hintergrundmessungen durchgeführt.

4.3.4.1 Urandioxid

Die Urandioxid-Probe besteht laut Deklaration aus 706.85 Gramm Uran insgesamt und 586.512 Gramm Uran-235. Daraus ergibt sich die sehr hohe Uran-235 Anreicherung von 82.98 Gewichtsprozent. Für diese Isotopenzusammensetzung ergibt sich eine mittlere freie Weglänge von 0.32 cm für thermische Neutronen, vergleiche Tabelle 3.3. Die Probe ist aus Sicht der Neutronenquelle mit circa 4 cm deutlich dicker. Die Probe und die Deklaration ihrer Eigenschaften sind circa 30-40 Jahre alt und die Probe ist wahrscheinlich mit Plutonium, Americium und weiteren Elementen kontaminiert. Eine neue Analyse ist geplant, steht aber noch aus, weshalb in Tabelle 4.4 gerundete Werte mit einer relativ großen Unsicherheit angegeben sind. Andere Schreibweisen für Urandioxid beinhalten Uran(IV)-oxid und UO_2 .

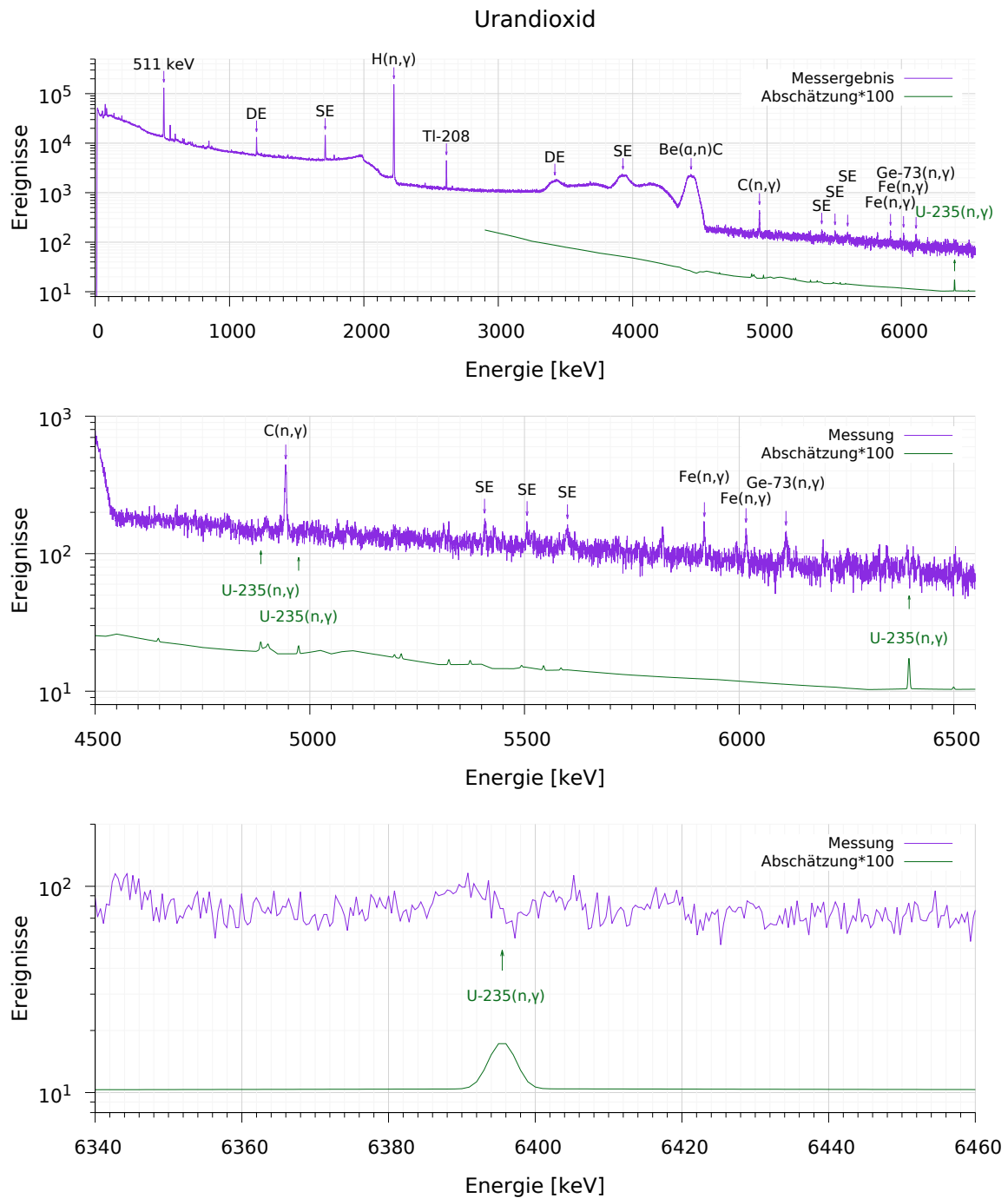


Abbildung 4.16 – Gammaspektrum der Urandioxid-Probe, bestrahlt mit Neutronen der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle, aufgenommen am 19.07.2016 ab 15¹⁷ Uhr, die *Live time* beträgt 2330 Sekunden, der Totzeit-Anteil 19.7%. Oben ist das gesamte aufgenommene Spektrum von 0 bis 6550 keV zu sehen, in der Mitte ein Ausschnitt von 4500 keV bis 6550 keV und unten ein Ausschnitt von 6340 keV bis 6460 keV. Zusätzlich zu der Messkurve (lila) ist das mit dem Faktor 100 multiplizierte Ergebnis der analytischen Abschätzung (grün) dargestellt.

Das Spektrum der von der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle bestrahlten Urandioxid-Probe ist in Abbildung 4.16 abgebildet: oben über den Energiebereich von 0 bis 6550 keV, in der Mitte der für die prompte Gamma-Aktivitätsanalyse von Uran wichtige Energiebereich von 4500 keV (darunter dominiert der $\text{Be-9}(\alpha, n)\text{C-12}$ Peak bei 4435.4 keV) bis 6550 keV und unten der Energiebereich mit dem mit Abstand stärksten Übergang von Neutroneneinfang in Uran von 6340 keV bis 6460 keV. Das Spektrum wurde über eine Totzeit korrigierte *Live time* von 2330 Sekunden (fast genau 39 Minuten) aufgenommen, die Totzeit hatte an der wahren Messzeit einen Anteil von 19.7 %.

Zunächst sieht das Spektrum in Abbildung 4.16 (oben) sehr ähnlich aus wie die bereits vorstellten, da in allen Spektren der Hintergrund stark dominiert. Die Peaks aus Neutroneneinfängen in Aluminium und Eisen sind weniger ausgeprägt als in vorhergehenden Spektren. Das liegt an der deutlich geringeren Messdauer. Der Peak bei 2614.2 keV ist dagegen trotz der kürzeren Messzeit viel stärker als in den vorhergehenden Spektren. Er stammt von Thallium-208, einem harten Gamma-Emitter, dessen höchste Zerfallslinie bei 2614.5 keV liegt [2]. Thallium-208 ist ein Zerfallsprodukt sowohl vom natürlich vorkommenden Thorium-232, als auch von Uran-232, wobei letzteres häufig in hoch-angereichertem Uran vorkommt, weshalb die 2614 keV-Linie auch zum Identifizieren von hoch-angereichertem Uran verwendet wird [161]. Uran-232 entsteht vor allem durch die Bestrahlung von Uran in nuklearen Reaktoren und damit gleichzeitig mit Plutonium (das in nuklearen Reaktoren aus Uran erbrütet wird) [162]. In hoch-angereichertem Uran kann der relative Anteil an Uran-232 besonders hoch sein, da es, falls wiederaufbereitetes Uran verwendet wird, teilweise zusammen mit dem Uran-235 vom Uran-238 separiert wird [162].

Die Neutroneneinfangslinie von Uran-235 bei 6395.5 keV ist mit Abstand der stärkste erwartete Übergang dieses Isotops. In Abbildung 4.16 ist diese Energie mit einem grünen Pfeil markiert und besonders im mittleren und unteren Spektrum ist zu sehen, dass dort kein signifikanter Peak vorhanden ist. Dies deckt sich mit dem Ergebnis der analytischen Abschätzung für die Americium-241/Beryllium Quelle und 707 Gramm Uran mit 83 % Uran-235 und 17 % Uran-238 Anreicherung, sowie einer Oberfläche von 9.22 cm² und einer Dicke von 4 cm in Richtung der Americium-241/Beryllium Quelle. Dieser Abschätzung zufolge trägt das Signal dieser Probe auch in den stärksten Peaks weniger als ein Hundertstel zur Messkurve bei. Es wurde deshalb in Abbildung 4.16 mit dem Faktor 100 multipliziert dargestellt, um den Informationsgehalt der Abbildung zu optimieren.

4.3.4.2 Metallisches Uran

Die metallische Uranprobe besteht aus drei Einzelproben, die zusammen rund 183 Gramm wiegen, das gerundete Gewicht des Uran-235 beträgt 171 Gramm.⁴ Daraus ergibt sich eine Anreicherung von circa 93 Gewichtsprozent, das metallische Uran ist waffengrädig. Für diese Isotopenzusammensetzung ergibt sich eine mittlere freie Weglänge von 0.15 cm für thermische Neutronen, vergleiche Tabelle 3.3. Die Probe ist aus Sicht der Neutronenquelle mit circa 1 cm deutlich dicker.

⁴Die genauen Massen und Uran-235 Anreicherungsgrade der Einzelproben sind dem Autor bekannt.

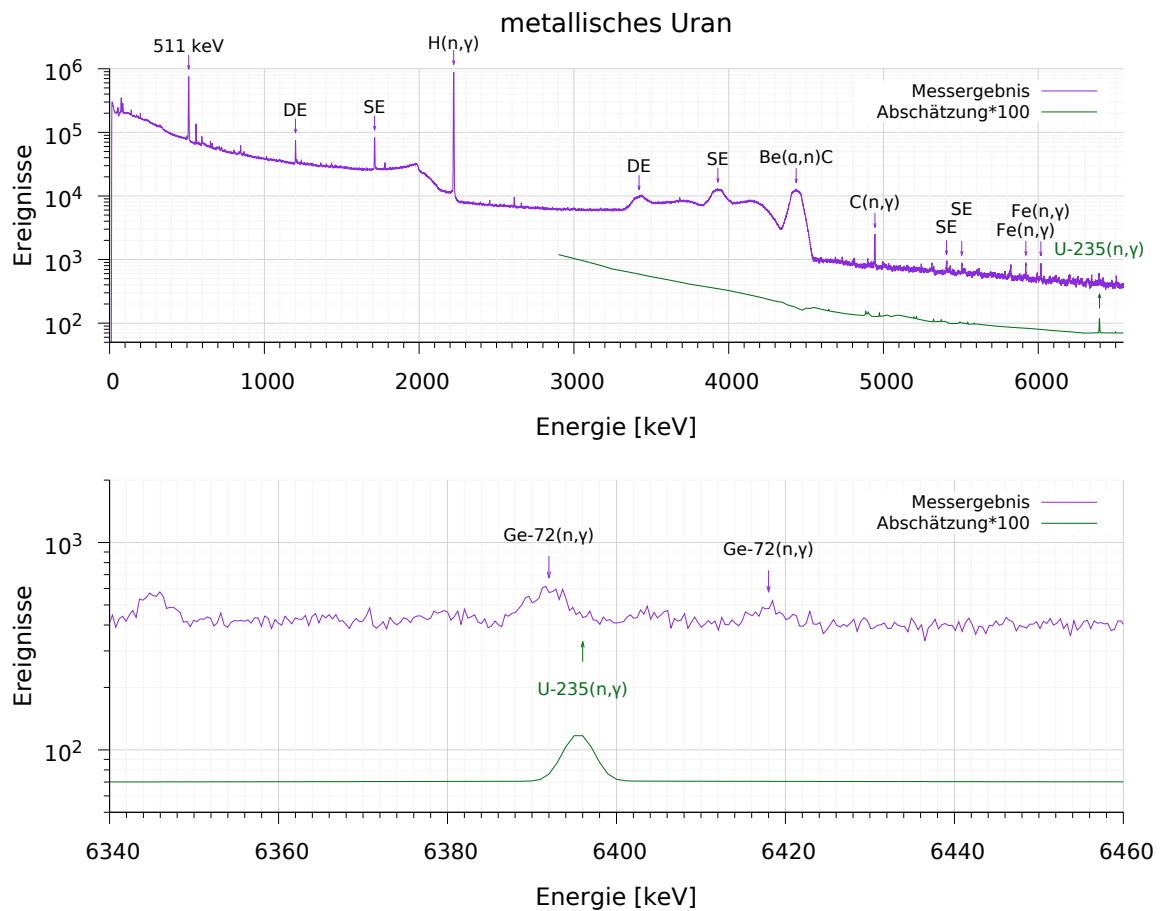


Abbildung 4.17 – Gammaspektrum der metallischen Uranprobe, bestrahlt mit Neutronen der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle, aufgenommen am 21.07.2016 ab 9⁰⁴ Uhr, die *Live time* beträgt 14 707 Sekunden, der Totzeit-Anteil 17.9%; oben das gesamte aufgenommene Spektrum von 0 bis 6550 keV und unten ein Ausschnitt von 6340 keV bis 6460 keV. Zusätzlich zu der Messkurve (lila) ist das mit dem Faktor 10 multiplizierte Ergebnis der analytischen Abschätzung (grün) dargestellt.

Im aktiven Gammaspektrum der metallischen Uranprobe ist der Thallium-208 Peak wieder deutlich schwächer, was auf einen geringeren Uran-232 Anteil hindeutet, siehe Abbildung 4.17 (oben). In diesem Spektrum ist ein schwacher Peak bei 6390 keV zu erkennen, also ganz in der Nähe der mit Abstand stärksten Neutroneneinfanglinie von Uran-235 bei 6395.5 keV. Das Ergebnis der analytischen Abschätzung für die Americium-241/Beryllium Quelle und 183 Gramm Uran mit 93 % Uran-235 und 7 % Uran-238 Anreicherung, sowie einer Oberfläche von 9.55 cm² und einer Dicke von 1 cm in Richtung der Americium-241/Beryllium Quelle lässt es allerdings als sehr unwahrscheinlich erscheinen, dass es sich dabei um denselben Peak handelt, da der Beitrag der prompten Gammas aus dem Uran zum gemessenen Spektrum kleiner als 1 % abgeschätzt wird. Stattdessen dominiert der aktive Hintergrund der Messung. Einer verbesserten Darstellung zuliebe wurde das Ergebnis der analytischen Abschätzung in Abbildung 4.17 mit dem Faktor 100 multipliziert eingezeichnet.

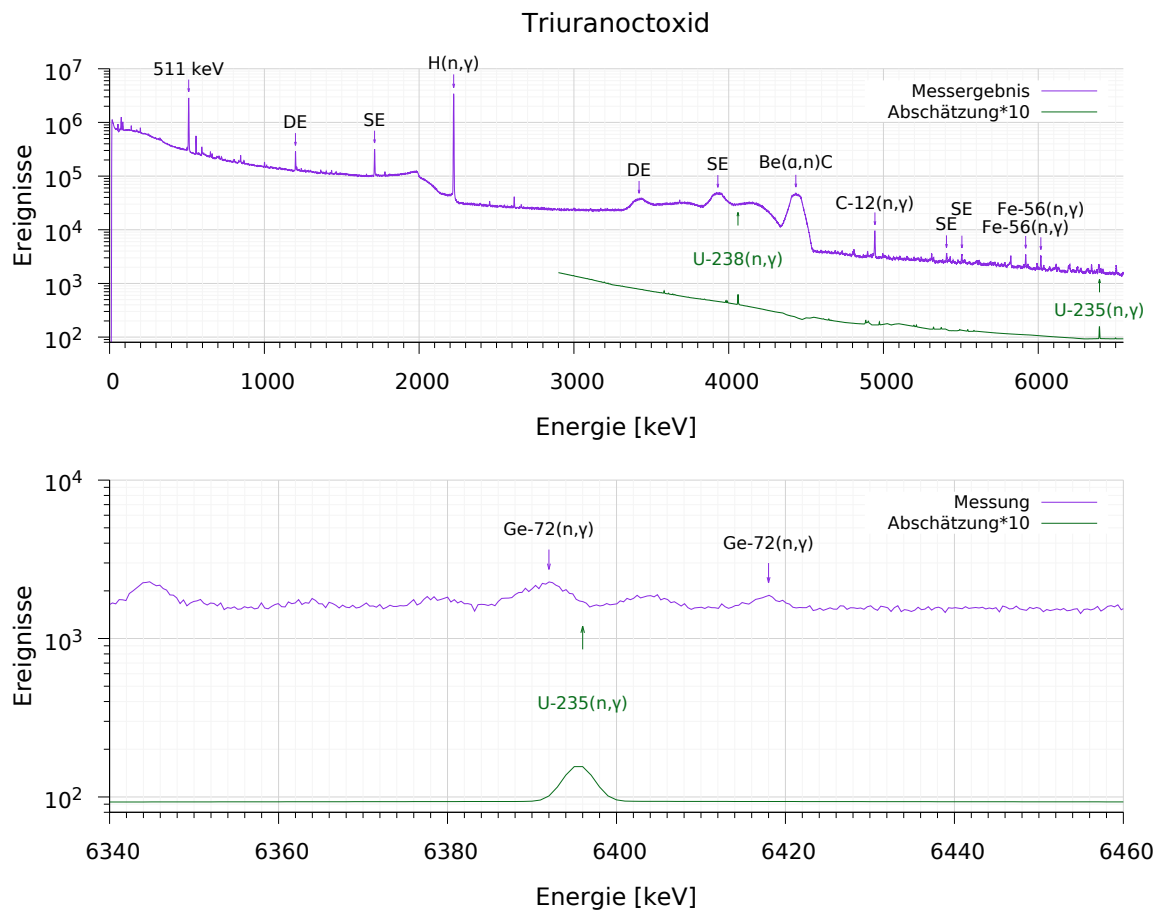


Abbildung 4.18 – Gammaspektrum der Triuranooctoxid-Probe, bestrahlt mit Neutronen der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle, aufgenommen am 21.07.2016 ab 14⁰⁵ Uhr, die *Live time* beträgt 55 241 Sekunden, der Totzeit-Anteil 18.2%; oben das gesamte aufgenommene Spektrum von 0 bis 6550 keV und unten ein Ausschnitt von 6340 keV bis 6460 keV. Zusätzlich zu der Messkurve (lila) ist das mit dem Faktor 10 multiplizierte Ergebnis der analytischen Abschätzung (grün) dargestellt.

Auch die mit Abstand stärkste Germanium-72(n, γ)-Linie in diesem Energiebereich liegt bei 6390 keV [105], ein weiterer Germanium-72(n, γ)-Peak bei 6418 keV ist deutlich schwächer, aber noch zu erkennen, siehe Abbildung 4.17 (unten). Das Verhältnis der Zählraten dieser beiden Peaks stimmt innerhalb des Fehlers mit den Verhältnissen der in CapGam angegebenen Intensitäten überein, wobei die Unsicherheit aufgrund der niedrigen Zählraten entsprechend groß ist. Ein signifikanter Beitrag aus strahlenden Neutroneneinfängen in Uran-235 zu diesem Peak ist nicht anzunehmen. Es ist keine Gammastrahlung aus Neutroneneinfängen in Uran-235 oder Uran-238 erkennbar.

4.3.4.3 Triuranooctoxid

Die Triuranooctoxid-Probe ist mit 2375 Gramm deutlich größer als die anderen Proben, hat aber nur eine Uran-235 Anreicherung von 5 Gewichtsprozent und ist also

nicht annähernd waffengrädig sondern niedrig-angereichert (LEU). Es ergibt sich ein Uran-235 Gewicht von 118.75 Gramm, der Uran-238 Anteil beträgt 95 Gewichtsprozent, das entspricht 2256.25 Gramm. Für diese Isotopenzusammensetzung ergibt sich eine mittlere freie Weglänge von 1.64 cm für thermische Neutronen, vergleiche Tabelle 3.3. Die Probe ist aus Sicht der Neutronenquelle mit circa 6 cm deutlich dicker. Die Aktivität der Triuranoxid-Probe beträgt $3.75 \cdot 10^7$ Becquerel und ist damit trotz ihrer Größe deutlich niedriger als die der Plutoniumproben, die insgesamt (alle zwanzig) eine Aktivität von circa $9 \cdot 10^{12}$ Becquerel haben. Triuranoxid wird auch als Uran(V,VI)-oxid oder U_3O_8 bezeichnet und unter Aufnahme von Sauerstoff durch Erhitzen aus Urandioxid erzeugt [163].

Das obere Spektrum in Abbildung 4.18 sieht den vorhergehenden wiederum sehr ähnlich. Der Thallium-208 Peak ist relativ klein, so wie in allen Spektren außer dem der metallischen Uranprobe. Weder der stärkste Uran-235(n, γ)-Peak bei 6395.5 keV noch der stärkste Uran-238(n, γ)-Peak bei 4060.4 keV sind identifizierbar, wobei der Untergrund bei 4060 keV durch die Compton Gammas des Be-9(α, n)C-12 Peaks deutlich größer ist als oberhalb von 4500 keV. Die analytische Abschätzung für die Americium-241/Beryllium Quelle und 2375 Gramm Uran mit 5 % Uran-235 und 95 % Uran-238 Anreicherung, sowie einer Oberfläche von 20.66 cm² und einer Dicke von 6 cm in Richtung der Americium-241/Beryllium Quelle ergibt, dass das Uran(n, γ)-Signal gut 100 Mal kleiner ist, als das gemessene Spektrum. Das Ergebnis der analytischen Abschätzung ist in Abbildung 4.18 als grüne Kurve dargestellt. In der Abbildung (unten) sind wiederum die beiden Germanium-72(n, γ) Peaks bei 6390 keV und 6418 keV schwach zu erkennen.

4.3.5 Zwischenfazit: Radioaktive Neutronenquelle

Trotz der relativ komplexen Versuchsanordnung mit einer relativ starken radioaktiven Neutronenquelle und einem hohen Grad an Thermalisierung durch das Polyethylen inklusive Rückstreuung durch den Polyethylenkasten und verhältnismäßig großen waffengrädigen Proben von Spaltmaterial ist es nicht gelungen Letzteres zu charakterisieren oder zu identifizieren. Das Neutroneneinfangssignal war zu schwach, um mit diesem Versuchsaufbau eine Plutonium oder Uran Übergangslinie zu identifizieren. Der gemessene Hintergrund ist den analytischen Abschätzungen zufolge für alle sechs untersuchten Targets um eine Größenordnung oder mehr stärker, als das Signal der Neutroneneinfänge im Spaltmaterial. Der sehr breite Gammapeak aus der Be-9(α, n)C-12 Reaktion bei 4435 keV trägt signifikant zum Untergrund bei und macht den Einsatz einer Americium-241/Beryllium Quelle für PGAA Experimente mit Spaltmaterial weniger attraktiv.

Darüber hinaus könnten Neutroneneinfänge im Germanium des Detektorkristalls ein Problem darstellen. Die stärkste Germanium-72(n, γ)-Linie liegt bei 6390.17 keV [153] und damit in unmittelbarer Nähe der mit Abstand stärksten Neutroneneinfangslinie von Uran-235 bei 6395.5 keV. Desweiteren gibt es einen Germanium-73(n, γ)-Peak bei 6109 keV, dessen *Single Escape* Peak bei 5598.3 keV liegt, also direkt bei der dritt-stärksten Plutonium-239(n, γ)-Linie bei 5594.9 keV.

4.4 Zusammenfassung potentiell störender Isotope

In den drei Experimenten wurden einige Nicht-Spaltmaterial Isotope aus den umgebenden Materialien identifiziert, die Gammaübergänge in unmittelbarer Nähe der erwarteten Übergangslinien aus Neutroneneinfängen in Uran-235 und Plutonium-239 haben. Diese Zerfallslinien sind in Tabelle 4.5 zusammengefasst, zusammen mit einigen weiteren potentiell störenden Gammaübergängen nach Neutroneneinfängen in Nicht-Spaltmaterial Isotopen.

Um die Störung zu minimieren sollte auf das Zählgas Argon verzichtet werden, sich möglichst wenig Eisen und Aluminium im aktiven Volumen befinden und die Neutronenflussdichte im Germaniumkristall so klein wie möglich gehalten werden. Die Kollimation von 4π -Neutronenquellen kann dazu beitragen, da dadurch das aktive Volumen verkleinert und die Neutronenflussdichte in umgebender Materie reduziert wird.

Sollten in Zukunft in Tabelle 4.5 aufgeführte Übergangslinien verwendet werden, um die Isotopenverhältnisse von Uran-235 und Uran-238 oder von Plutonium-239 und Plutonium-240 zu bestimmen, so müssen deren Peakflächen gegebenenfalls um die Beiträge anderer Isotope korrigiert werden. So wird ausgeschlossen, dass die Anteile der Spaltmaterial-Isotope durch die Anwesenheit anderer Materialien überschätzt werden.

Experimente sollten möglichst in großen Hallen durchgeführt werden und nicht in kleinen Räumen mit Betonwänden. Der Beton ist zwar sehr gut geeignet, um die Umgebung von den Neutronen abzuschirmen, ein Teil der Neutronen wird aber zurück auf das Experiment gestreut, wodurch sich der aktive Hintergrund deutlich vergrößern kann. Dies kann gerade in Kombination mit den niedrigen spezifischen Übergangswahrscheinlichkeiten für die Neutroneneinfangslinien in Uran-235, Uran-238, Plutonium-239 und Plutonium-240 dazu führen, dass die gesuchten Linien sich nicht signifikant vom Hintergrund abheben.

Isotop	Energie keV	potentiell gestörtes Isotop	Energie keV
Argon-40	5582.40±0.80		5573.74±0.13
Argon-40	5582.40±0.80		5594.88±0.16
Germanium-73	5598.10±0.00 ^a	Plutonium-239	5594.88±0.16
Aluminium-27	5585.54±0.05		5594.88±0.16
Eisen-56	5920.35±0.07		5934.80±0.20
Aluminium-27	3881.80±0.40		3883.89±0.04
Germanium-73	3883.50±0.20	Plutonium-240	3883.89±0.04
Aluminium-27	3949.80±0.40		3944.81±0.04
Germanium-73	4473.50±0.30		4472.29±0.04
Germanium-73	4885.90±0.10		4885.50±0.60
Germanium-73	4976.50±0.70	Uran-235	4973.70±0.60
Germanium-72	6390.17±0.04		6395.50±0.20
Aluminium-27	3591.21±0.01		3583.10±0.20
Aluminium-27	4660.04±0.01	Uran-238	4660.70±0.20
Rubidium-90 ^b	4061.69±0.28 ^c		4060.70±0.20

^a Single Escape der Zerfallslinie bei 6109.10 ± 0.00 keV

^b Spaltprodukt von Uran-235, übernommen von Molnár *et al.* [100]

^c Energie der Zerfallslinie übernommen aus [2]

Tabelle 4.5 – Potentiell störende Gammaübergänge nach Neutroneneinfängen in Nicht-Spaltmaterial Isotopen. Zusätzlich zu den im Rahmen der Messungen als störend identifizierten Peaks sind weitere potentiell störende Gammaübergänge in dunkelgrauer Farbe angegeben. Soweit nicht anders spezifiziert, wurden die Energien für die Plutonium-239 Übergänge von Chrien *et al.* übernommen [86], alle anderen aus der CapGam Datenbank [105].

Kapitel 5

Fazit und Ausblick

5.1 Fazit

Die im Rahmen der analytischen Abschätzungen entwickelten *Mathematica* Skripte stellen ein wertvolles Werkzeug zur Abschätzung von Neutroneneinfangsignaturen in Uran-235, Uran-238, Plutonium-239 und Plutonium-240 dar. Dabei können die Massen und Isotopenzusammensetzungen frei gewählt werden. Die durchgeführten analytischen Abschätzungen konnten so einen signifikanten Beitrag zur Vorbereitung der Messkampagnen und für die erforderlichen Strahlenschutzabschätzungen leisten. Die Eigenentwicklung der *Mathematica* Skripte war insbesondere deshalb notwendig, weil nur auf eine relativ kleine Anzahl publizierter Vorarbeiten zurückgegriffen werden konnte. Durch die Fokussierung dieser Publikationen auf thermische Neutronen sind die Aussagen der analytischen Abschätzungen für diese am belastbarsten. Für schnelle Neutronen fehlt dagegen teilweise noch grundlegendes Wissen. Die Ergebnisse der analytischen Abschätzungen sind vielversprechend für Plutonium, deuten aber darauf hin, dass es anspruchsvoll ist, den Isotopenvektor von waffengrädigem Uran mit prompter Gamma-Aktivitäts-Analyse zu bestimmen. Sie zeigen weiterhin, dass thermische Neutronen insbesondere für kleine Targets weitaus besser geeignet sind. Der Großteil der Ergebnisse der analytischen Abschätzungen wurde bereits in einem begutachteten Fachzeitschriftenartikel publiziert.

Im Rahmen der Messkampagne wurden drei Messreihen aufgenommen. Die erste mit thermalisierten Neutronengeneratoren und knapp zwei Kilogramm abgereichertem Uran, die zweite an einem Forschungsreaktor mit einem knappen halben Milligramm Plutonium-239 und die dritte mit einer thermalisierten Americium-Beryllium Neutronenquelle und verschieden Spaltmaterial-Targets, darunter waffengrädige Isotopenzusammensetzungen mit Massen im dreistelligen Grammbereich. Alle Messungen wurden an externen Instituten durchgeführt, da die Universität Hamburg über kein eigenes Spaltmaterial verfügt. Mit keiner der realisierten Versuchsanordnungen konnten die Isotope des jeweiligen Spaltmaterial-Targets oder dessen Isotopenvektor bestimmt werden. Nur bei dem Versuchsaufbau mit dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und abgereichertem Uran war die stärkste Uran-238(n, γ)-Linie zumindest ansatzweise zu erkennen. Dies stimmt mit den entsprechenden analytischen Abschätzungen überein, da der Untergrund der Messungen jeweils deutlich größer war, als die abgeschätzte Neutroneneinfangsignatur. Aus den Messergebnissen

mit dem abgereicherten Uran mit einem sehr hohen Uran-238 Anteil können kaum Schlüsse über waffengrädiges Uran gezogen werden. Abgesehen davon, dass kein waffengrädiges Spaltmaterial zur Verfügung stand, konnte mit diesen Messungen auf die Arbeit von Chichester *et al.* aufgebaut und der Versuchsaufbau um Polyethylen zur Moderation der schnellen Neutronen erweitert und verbessert werden. Wie von den analytischen Abschätzungen vorhergesagt, ist der Deuterium-Deuterium-Neutronengenerator weitaus geeigneter für diese Anwendung, als der Deuterium-Tritium-Neutronengenerator. Für Letzteren war keine einzige Neutroneneinfangslinie von Uran zu erkennen und der Hintergrund war auch bei demselben Target aus abgereichertem Uran über drei Größenordnungen größer als das zu erwartende Neutroneneinfangssignal. Ähnliches gilt für die anderen Versuchsanordnungen. Auch beim Versuchsaufbau mit der thermalisierten Americium-241/Beryllium-Quelle konnten die Spaltmaterial-Targets nicht im Spektrum identifiziert werden, obwohl Spaltmaterial-Targets mit Massen im dreistelligen Grammbereich und verschiedenen Isotopenzusammensetzungen untersucht wurden. Der aktive Gammahintergrund der Americium-241/Beryllium-Quelle hat sich als deutlich störend erwiesen. Am Forschungsreaktor des *Budapest Neutron Center* konnte reines Plutonium-239 bestrahlt werden, allerdings nur mit einer Masse von knapp einem halben Milligramm. Aus der Abwesenheit von Gammalinien aus Neutroneneinfängen in Plutonium im so gemessenen Spektrum kann nicht auf größere Probenmassen geschlossen werden. Aus der Literatur ist bekannt, dass es möglich ist, sowohl Plutonium-239 als auch Plutonium-240 zu identifizieren, zumindest jeweils einzeln. Die analytischen Abschätzungen deuten darauf hin, dass es an einem Forschungsreaktor darüber hinaus möglich sein sollte, die Isotopenzusammensetzung zu bestimmen. In dem am Forschungsreaktor durchgeführten Experiment konnten fünf Isotope identifiziert werden, deren Neutroneneinfangslinien potentiell die von Plutonium-239 und Uran-235 stören könnten: Eisen-56, Argon-40, Aluminium-27, Germanium-72 und Germanium-73.

Mit den hier vorgestellten Ergebnissen können in Zukunft verbesserte Versuchsanordnungen realisiert werden.

5.2 Ausblick

Der nächste, relativ einfache Schritt zur Untersuchung des Potentials von hochenergetischen Neutroneneinfangsgammas zur Charakterisierung von Spaltmaterial, der mit überschaubarem Aufwand durchgeführt werden kann, wären Messungen mit den hier vorgestellten Spaltmaterial-Proben des *Joint Research Centre* Karlsruhe und einem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator. Es ist logistisch relativ unkompliziert, Deuterium-Deuterium Neutronengeneratoren zu transportieren, da diese keine radioaktive Strahlung emittieren, wenn sie abgeschaltet sind. Nachdem am Joint Research Centre Karlsruhe bereits erfolgreich eine Umgangsgenehmigung für die 10 Curie Americium-241/Beryllium Quelle eingeholt worden ist, deren Neutronenausbeute um eine Größenordnung höher ist als die des Deuterium-Deuterium Neutronengenerators des Fraunhofer Instituts für Technikfolgenabschätzung INT, sollte die Beantragung einer entsprechenden Umgangsgenehmigung nicht allzu aufwendig sein.

Die Ergebnisse dieser Arbeit zeigen aber auch, dass ein Neutronengenerator mit einer deutlich höheren Neutronenausbeute verwendet werden sollte, da der oben genannte Neutronengenerator voraussichtlich zu schwach ist. Wenn möglich, sollte der Neutronengenerator darüber hinaus kollimiert werden, um die Neutronenflussdichte im Spaltmaterial-Target zu erhöhen und den aktiven Strahlungshintergrund zu reduzieren. Durch die Pulsung des Neutronengenerators und das Messen nur direkt nach der Bestrahlung und in Anti-Koinzidenz zu Neutronenereignissen kann darüber hinaus der Gammahintergrund aus induzierten Spaltungen verringert werden.

Um ungewollte Rückstreuung an Beton zu vermeiden sollten zukünftige Experimente eher in großen Hallen aufgebaut werden, als in Räumen mit dicken Betonwänden. Unabhängig von diesen Maßnahmen müssen die potentiellen Beiträge von andern Übergangslinien zu den betrachteten Peaks weiter untersucht und berücksichtigt werden, um eine korrekte Analyse zu gewährleisten.

Die Messergebnisse für die Versuchsanordnung mit der thermalisierten radioaktiven Americium-241/Beryllium Neutronenquelle und den größten in Deutschland zur Verfügung stehenden waffengrädigen Spaltmaterial-Targets lassen darauf schließen, dass sie keine geeignete Neutronenquelle für diese Messmethode darstellt. Sollten trotz der hier vorgestellten Ergebnisse weitere Messungen durchgeführt werden, müssten deutlich größere Spaltmaterial-Targets zur Verfügung stehen, wobei aufgrund der geringen mittleren freien Weglänge der Neutronen in Spaltmaterial vor allem die Oberfläche in Richtung der Quelle eine Rolle spielt. Alternativ könnte die Neutronenflussdichte im Target durch den Einsatz eines Neutronen-Kollimators deutlich erhöht werden. Der Hintergrund sollte dann auf jeden Fall durch den Einsatz eines *Choppers* und einer Anti-Koinzidenz Elektronik reduziert werden. Dabei sollte auf Materialien verzichtet werden, die starke Gammaemitter sind, wie zum Beispiel Cadmium oder Gadoliniumoxid und stattdessen zum Beispiel auf Lithium-6 Polymere zurückgegriffen werden.

In Forschungsreaktoren wurde zwar die Atomlevelstruktur von Uran-235, Uran-238, Plutonium-239 und Plutonium-240 bereits mit den Signaturen der Neutroneneinfangsreaktionen untersucht; der Nachweis, dass die Isotopenvektoren von waffengrädigem Spaltmaterial gemessen werden können, steht aber weiterhin aus. In

zukünftigen Experimenten sollte der Anteil von Eisen-56, Argon-40 und Aluminium-27 im aktiven Volumen minimiert werden, da deren Neutroneneinfangslinien die von Plutonium-239, Plutonium-240 und Uran-238 überlappen könnten. Auch bei Forschungsreaktoren sollte der Neutronenfluss möglichst durch einen *Chopper* gepulst und das Gammaspektrum nur in Anti-Koinzidenz zu Neutronenereignissen aufgezeichnet werden. Sollte dafür eine Spaltkammer verwendet werden, sollte diese mit einem anderen Zählgas als Argon befüllt werden. Ist ein Träger für das Spaltmaterial-Target notwendig, sollten anstelle von Aluminium Materialien mit wenig potentiell störenden Neutroneneinfangslinien wie zum Beispiel Zirkonium oder Diamant verwendet werden.

Für die Vorbereitung zukünftiger Messungen und für die Reduzierung von Unsicherheiten bei der Bestimmung von Isotopenverhältnissen über die prompten Neutronen Gamma Aktivitäts-Analyse ist es hilfreich, die spezifischen Übergangswahrscheinlichkeiten der Isotope Uran-235, Uran-238, Plutonium-239 und Plutonium-240 nach thermischen Neutroneneinfängen genauer zu bestimmen. Dies gilt umso mehr für schnelle Neutroneneinfänge, für die nicht nur die spezifischen Übergangswahrscheinlichkeiten, sondern auch die Energie der Übergänge noch bestimmt werden müssen. Die Ergebnisse sind auch für die Grundlagenforschung von Interesse.

Das Potential von hoch-energetischen Neutroneneinfangsgammas für die Abrüstungsverifikation ist begrenzt. Die durchgeführten Experimente haben gezeigt, dass das Signal zu Untergrund Verhältnis sehr niedrig ist. Von den untersuchten tragbaren Quellen hat sich der Deuterium-Deuterium Neutronengenerator als am vielversprechendsten erwiesen. Gegen Forschungsreaktoren als Neutronenquellen für Anwendung in der Abrüstungsverifikation spricht, dass die zu untersuchenden Targets, also Kernwaffen oder ihre Bestandteile immer zum Reaktor gebracht werden müssten. Dies bedingt nicht nur einen höheren logistischen Aufwand, sondern auch ein potentiell hohes Sicherheitsrisiko und Unverständnis in der Öffentlichkeit. Es ist deshalb zur Zeit ein sehr unwahrscheinliches Szenario. Falls sich aber andere neue Messtechniken als ungeeignet erweisen, könnten zukünftige Bewertungen anders ausfallen und die hohen Neutronenflussdichten und niedrigen Neutronenenergien bei Forschungsreaktoren als unverzichtbar angesehen werden. Auch Spallationsquellen sind nicht transportabel, haben aber das Potential deutlich höhere Neutronenflussdichten zu erzeugen als bislang zur Verfügung stehen. Wird die Europäische Spallationsquelle ESS 2025 wie geplant fertiggestellt, so wird sie die bisherigen stärksten Neutronenquellen um bis zu einen Faktor 100 übertreffen. Dann könnte sie trotz der für die prompten Neutronen Gamma Aktivitäts-Analyse an sich ungünstig hohen Neutronenenergie eine Alternative oder Ergänzung zu den hier vorgestellten Neutronenquellen darstellen.

Thermalisierte Deuterium-Deuterium Neutronengeneratoren sind die vielversprechendste Neutronenquelle für die Anwendung hoch-energetischer Neutroneneinfangsgammas in der Abrüstungsverifikation, deren Funktionalitätsnachweis aber noch aussteht. Das Gleiche gilt für eine potentielle Anwendung in der nuklearen Gefahrenabwehr.

Literaturverzeichnis

- [1] A. Myrdal, “Dankesrede zum Friedenspreis des Deutschen Buchhandels,” 1970.
http://www.friedenspreis-des-deutschen-buchhandels.de/sixcms/media.php/1290/1970_myrdal.pdf
- [2] C. M. Lederer, V. S. Shirley, E. Browne, J. M. Dairiki, R. E. Doebler, A. A. Shihab-Eldin, L. J. Jardine, J. K. Tuli, and A. B. Buryn, *Table of Isotopes*, 7th ed., ser. A Wiley-Interscience Publication, C. M. Lederer and V. S. Shirley, Eds. Wiley, 1978.
<https://archive.org/details/TableOfIsotopes>
- [3] W. Wahl, “Radionuclide Handbook for Laboratory Workers,” Institute for Spectrometry and Radiation Protection, Tech. Rep., November 2001.
<http://www.isus.de/english/table.htm>
- [4] U. S. Strategic Bombing Survey, “The Effects of Atomic Bombs on Hiroshima and Nagasaki,” p. 16 ff, 1946.
https://www.trumanlibrary.org/whistlestop/study_collections/bomb/large/documents/index.php?documentid=65
- [5] L. Scott and R. Hughes, *The Cuban Missile Crisis: A Critical Reappraisal*, ser. Cold War History. Taylor & Francis, 2015.
<https://books.google.de/books?id=UJEGCAAQBAJ>
- [6] Auswärtiges Amt (AA). (2016) Vertrag über die Nichtverbreitung von Kernwaffen (NVV). Zuletzt besucht am 14.03.2017.
<http://www.auswaertiges-amt.de/DE/Aussenpolitik/Friedenspolitik/Abruestung/NukleareAbruestung/NVV.html>
- [7] United Nations Office for Disarmament Affairs (UNODA). Treaty on the Non-Proliferation of Nuclear Weapons (NPT). Zuletzt besucht am 25.11.2016.
<https://www.un.org/disarmament/wmd/nuclear/npt/>
- [8] R. S. Norris and H. M. Kristensen, “Global nuclear stockpiles, 1945-2006,” *Bulletin of the Atomic Scientists*, vol. 62:4, pp. 64–66, 2006.
<http://www.tandfonline.com/doi/pdf/10.1080/00963402.2006.11461005>
- [9] Federation of American Scientists, H. M. Kristensen, and R. S. Norris. (2017) Federation of American Scientists Nuclear Notebook. Zuletzt besucht am

- 24.01.2017.
<https://fas.org/issues/nuclear-weapons/nuclear-notebook/>
- [10] Bulletin of the Atomic Scientists. (2017) Nuclear Notebook - Nuclear Arsenals of the World. Zuletzt besucht am 24.01.2017.
<http://thebulletin.org/nuclear-notebook-multimedia>
- [11] M. Roser and M. Nagdy. (2016) OurWorldInData.org - Nuclear Weapons. Zuletzt besucht am 24.01.2017.
<https://ourworldindata.org/nuclear-weapons/>
- [12] J. Malik, "The Yields of the Hiroshima and Nagasaki Nuclear Explosions," Los Alamos National Laboratory, Tech. Rep. LA-8819, September 1985.
<http://permalink.lanl.gov/object/tr?what=info:lanl-repo/lareport/LA-08819>
- [13] R. Campbell, *The Silverplate Bombers: A History and Registry of the Enola Gay and Other B-29s Configured to Carry Atomic Bombs*. McFarland, 2005.
<https://www.mcfarlandbooks.com/book-2.php?id=978-0-7864-6907-9>
- [14] Federation of American Scientists (FAS). (2000) LGM-118A Peacekeeper. Zuletzt besucht am 23.11.2016.
<http://fas.org/nuke/guide/usa/icbm/lgm-118.htm>
- [15] International Panel on Fissile Materials (IPFM), "Global Fissile Material Report 2015: Nuclear Weapon and Fissile Material Stockpiles and Production," International Panel on Fissile Materials (IPFM), Tech. Rep., 2015.
<http://fissilematerials.org/library/gfmr15.pdf>
- [16] Arms Control Association (ACA). (2014, April) U.S.-Russian Nuclear Arms Control Agreements at a Glance. Zuletzt besucht am 16.11.2016.
<https://www.armscontrol.org/factsheets/USRussiaNuclearAgreementsMarch2010>
- [17] B. Obama. (2009) Remarks By President Barack Obama In Prague As Delivered. Zuletzt besucht am 14.07.2017.
<https://obamawhitehouse.archives.gov/the-press-office/remarks-president-barack-obama-prague-delivered>
- [18] U.S. Department of Defense, "Nuclear Posture Review Report," April 2010.
http://www.defense.gov/Portals/1/features/defenseReviews/NPR/2010_Nuclear_Posture_Review_Report.pdf
- [19] A. Flocken and J. Sommer. (2015, Oktober) Streitkräfte und Strategien: Atomare Abrüstung - Humanitäre Initiative. Podcast. Norddeutscher Rundfunk. Min. 21 bis Ende, zuletzt besucht am 03.03.2016.
<http://www.ndr.de/info/Streitkraefte-und-Strategien,audio258060.html>
- [20] Afghanistan, Algeria, Andorra, Angola, Antigua, Barbuda, Argentina, Austria, Bahamas, Bahrain, Barbados, Belize, Benin, Bolivia, Botswana, Brazil, Brunei, B. Faso, Burundi, C. Verde, Cambodia, C. A. Republic, Chad,

Chile, Colombia, Comoros, D. R. o. Congo, R. o. Congo, C. Islands, C. Rica, C. d'Ivoire, Cuba, Cyprus, Djibouti, Dominica, D. Republic, Ecuador, Egypt, E. Salvador, Eritrea, Ethiopia, Fiji, Gambia, Ghana, Grenada, Guatemala, Guinea, Guinea-Bissau, Guyana, Haiti, Honduras, Indonesia, Iran, Iraq, Ireland, Jamaica, Jordan, Kazakhstan, Kenya, Kiribati, Kuwait, Kyrgyzstan, Lebanon, Lesotho, Liberia, Libya, Liechtenstein, Macedonia, Madagascar, Malawi, Malaysia, Malta, Mali, M. Islands, Mauritania, Mauritius, Mexico, Mongolia, Namibia, Nauru, Nicaragua, Niger, Nigeria, Niue, Oman, Palau, Palestine, Panama, P. N. Guinea, Paraguay, Peru, Philippines, Qatar, S. Kitts, Nevis, S. Lucia, S. Vincent, the Grenadines, Samoa, S. Marino, S. Tome, Principe, S. Arabia, Senegal, Serbia, Seychelles, S. Leone, Singapore, Somalia, S. Africa, S. Lanka, Sudan, Suriname, Swaziland, Tajikistan, Tanzania, Thailand, Timor-Leste, Togo, Trinidad, Tobago, Tunisia, Tuvalu, Uganda, U. A. Emirates, Uruguay, Vanuatu, Venezuela, V. Nam, Yemen, Zambia, and Zimbabwe. (December 2014) . Humanitarian Initiative. Zuletzt besucht am 09.05.2017.

https://www.bmeia.gv.at/fileadmin/user_upload/Zentrale/Aussenpolitik/Abruestung/HINW14/HINW14vienna_Pledge_Document.pdf

- [21] International Campaign to Abolish Nuclear Weapons (ICAN). Stigmatize, prohibit and eliminate nuclear weapons. Zuletzt besucht am 16.11.2016.
<http://www.icanw.org/pledge/>
- [22] United Nations General Assembly, "Draft Resolution - General and complete disarmament: taking forward multilateral nuclear disarmament negotiations," 2016.
https://www.un.org/en/ga/search/view_doc.asp?symbol=A/RES/71/258
- [23] First Committee of the United Nations General Assembly, "Draft Resolution - General and complete disarmament: taking forward multilateral nuclear disarmament negotiations," 2016.
<https://www.un.org/Docs/journal/asp/ws.asp?m=A/C.1/71/L.41>
- [24] United Nations conference to negotiate a legally binding instrument to prohibit nuclear weapons, leading towards their total elimination, "Voting results on the Draft treaty on the prohibition of nuclear weapons," 2017.
<https://www.un.org/disarmament/ptnw/>
- [25] United Nations conference to negotiate a legally binding instrument to prohibit nuclear weapons, leading towards their total elimination, "Treaty on the prohibition of nuclear weapons," 2017.
<http://undocs.org/A/CONF.229/2017/8>
- [26] International Campaign to Abolish Nuclear Weapons (ICAN). (2016) Voting on UN resolution for nuclear ban treaty.
<http://www.icanw.org/campaign-news/voting-on-un-resolution-for-nuclear-ban-treaty/>

- [27] International Atomic Energy Agency, “IAEA Safeguards Glossary,” 2002.
http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/nvs-3-cd/PDF/NVS3_scr.pdf
- [28] International Panel on Fissile Materials (IPFM), “Global Fissile Material Report 2009: A Path to Nuclear Disarmament,” International Panel on Fissile Materials (IPFM), Tech. Rep., 10 2009.
<http://fissilematerials.org/library/gfmr09.pdf>
- [29] U.S. National Nuclear Security Administration (NNSA). US-Russia Partnership Reaches Key Milestone in Converting Russian Nuclear Weapons into US Nuclear Fuel. Zuletzt besucht am 03.08.2017.
<https://nnsa.energy.gov/mediaroom/pressreleases/heupurchasagreement061913>
- [30] Vereinigte Staaten von Amerika and Russische Föderation, “Agreement between the Government of the United States of America and the Government of the Russian Federation Concerning the Management and Disposition of Plutonium Designated as No Longer Required for Defense Purposes and Related Cooperation,” 2000.
<https://www.state.gov/documents/organization/18557.pdf>
- [31] Vereinigte Staaten von Amerika and Russische Föderation, “Protocol to the Agreement between the Government of the United States of America and the Government of the Russian Federation Concerning the Management and Disposition of Plutonium Designated as No Longer Required for Defense Purposes and Related Cooperation,” 2010.
<https://www.state.gov/documents/organization/182688.pdf>
- [32] International Panel on Fissile Materials (IPFM) Blog. Russia suspends implementation of plutonium disposition agreement. Zuletzt besucht am 03.08.2017.
http://fissilematerials.org/blog/2016/10/russia_suspends_implement.html
- [33] China, France, Germany, the Russian Federation, the United Kingdom, the United States, the High Representative of the European Union for Foreign Affairs and Security Policy, and the Islamic Republic of Iran, “Joint Comprehensive Plan of Action.”
<https://www.state.gov/documents/organization/245317.pdf>
- [34] T. Caughley, H. Feiveson, A. Schaper, B. Pellaud, and A. Persbo, “A Fissile Material Cut-off Treaty - Understanding the Critical Issues,” United Nations Institute for Disarmament Research (UNIDIR), Tech. Rep. UNIDIR/2010/4, 2010.
<http://www.unidir.org/files/publications/pdfs/a-fissile-material-cut-off-treaty-understanding-the-critical-issues-139.pdf>
- [35] Ambassador Gerald E. Shannon of Canada, “Report of Ambassador Gerald E. Shannon of Canada on Consultations on the most appropriate arrangement

- to negotiate a treaty banning the production of fissile material for nuclear weapons or other nuclear explosive devices.”
<http://daccess-ods.un.org/access.nsf/Get?OpenAgent&DS=CD/1299&Lang=E>
- [36] United Nations Secretary-General, “Group of Governmental Experts to make recommendations on possible aspects that could contribute to but not negotiate a treaty banning the production of fissile material for nuclear weapons or other nuclear explosive devices.”
https://www.un.org/ga/search/viewm_doc.asp?symbol=A/70/81
- [37] United Nations Office at Geneva (UNOG). High Level Fissile Material Cut-Off Treaty (FMCT) Expert Preparatory Group. Zuletzt besucht am 03.04.2017.
[http://www.unog.ch/80256EE600585943/\(httpPages\)/B8A3B48A3FB7185EC1257B280045DBE3](http://www.unog.ch/80256EE600585943/(httpPages)/B8A3B48A3FB7185EC1257B280045DBE3)
- [38] Republik Frankreich, “Draft Treaty Banning the Production of Fissile Material for Nuclear Weapons or Other Nuclear Explosive Devices .”
http://fissilematerials.org/blog/2015/04/france_submitted_draft_fi.html
- [39] Deutsche Bundesregierung, “Bericht der Bundesregierung zum Stand der Bemühungen um Rüstungskontrolle, Abrüstung und Nichtverbreitung sowie über die Entwicklung der Streitkräftepotenziale (Jahresabrüstungsbericht 2015),” Deutscher Bundestag, Tech. Rep. Drucksache 18/8065, April 2016.
<http://dip21.bundestag.de/dip21/btd/18/080/1808065.pdf>
- [40] Nuclear Threat Initiative (NTI). (2013) Russia Insists on Multilateral Nuclear Arms Control Talks. Zuletzt besucht am 25.11.2016.
<http://www.nti.org/gsn/article/russia-insists-next-round-nuke-cuts-be-multilateral/>
- [41] A. Schaper, “Verifikation der Abrüstung von Kernmaterial,” Hessische Stiftung Friedens und Konfliktforschung (HSFK), Tech. Rep., 2009.
http://www.hsfk.de/fileadmin/HSFK/hsfk_downloads/report0309.pdf
- [42] O. Bukharin, “Russian and US technology development in support of nuclear warhead and material transparency initiatives” in N. Zarimpas, “Transparency in Nuclear Warheads and Materials - The Political and Technical Dimensions,” 2003.
<http://books.sipri.org/files/books/SIPRI03Zarimpas/SIPRI03Zarimpas08A.pdf>
- [43] International Atomic Energy Agency. IAEA Safeguards Overview: Comprehensive Safeguards Agreements and Additional Protocols. Zuletzt besucht am 18.11.2016.
<https://www.iaea.org/publications/factsheets/iaea-safeguards-overview>

- [44] A. Schaper, "Monitoring and verifying the storage and disposition of fissile materials and the closure of nuclear facilities" in N. Zarimpas, "Transparency in Nuclear Warheads and Materials - The Political and Technical Dimensions," 2003.
<http://books.sipri.org/files/books/SIPRI03Zarimpas/SIPRI03Zarimpas10.pdf>
- [45] B. Jasani, I. Niemeyer, S. Nussbaum, B. Richter, and G. Stein, *International Safeguards and Satellite Imagery: Key Features of the Nuclear Fuel Cycle and Computer-Based Analysis*, ser. Humanities, Social Sciences and Law. Springer Berlin Heidelberg, 2009.
<http://www.springer.com/gp/book/9783540791317>
- [46] R. S. Kemp, "Environmental Detection of Clandestine Nuclear Weapon Programs," *Annual Review of Earth and Planetary Sciences*, vol. 44, pp. 17–35, 2016.
<http://www.annualreviews.org/doi/abs/10.1146/annurev-earth-060115-012526>
- [47] T. W. Wood, B. D. Reid, C. M. Toomey, K. Krishnaswami, K. A. Burns, L. O. Casazza, D. S. Daly, and L. L. Duckworth, "The Future of Nuclear Archaeology: Reducing Legacy Risks of Weapons Fissile Material," *Science & Global Security*, vol. 22, no. 1, pp. 4–26, 2014.
<http://dx.doi.org/10.1080/08929882.2014.874217>
- [48] C. Comley, M. Comley, P. Eggins, G. George, S. Holloway, M. Ley, P. Thompson, and K. Warburton, "Confidence, Security & Verification," Atomic Weapons Establishment (AWE), Tech. Rep., 2000.
<http://fissilematerials.org/library/awe00.pdf>
- [49] J. T. Mihalczko, J. K. Mattingly, J. A. Mullens, and J. S. Neal, *NMIS With Gamma Spectrometry for Attributes of Pu and HEU, Explosives and Chemical Agents*, May 2002.
<http://www.osti.gov/scitech/servlets/purl/799512>
- [50] Committee on International Security and Arms Control, National Research Council, *Monitoring Nuclear Weapons and Nuclear-Explosive Materials: An Assessment of Methods and Capabilities*, J. P. Holdren and S. Fetter, Eds. National Academy of Sciences, 2005.
https://www.nap.edu/catalog.php?record_id=11265
- [51] K. D. Seager, K. M. Tolk, D. J. Mitchel, R. L. Lucero, T. W. Laub, and K. W. Insch, "Trusted Radiation Identification System," in *Proceedings of the 42nd Annual Institute of Nuclear Materials Management (INMM) Meeting*, 2001.
<https://www.inmm.org/source/proceedingssearch/processSearch.cfm>
- [52] D. J. Mitchell and K. M. Tolk, "Trusted Radiation Attribute Demonstration System," Sandia National Laboratories, Tech. Rep. SAND-2000-1481C, 2000.
https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:32016771

- [53] D. G. Langner, S.-T. Hsue, D. W. MacArthur, N. J. Nicholas, R. Whiteson, T. B. Gosnell, Z. Koenig, J. Wolford, M. Aparo, I. Kulikov, J. Puckett, J. Whichello, S. Razinkov, A. Livke, and V. J. Poplavko, "Attribute Verification Systems with Information Barriers for Classified Forms of Plutonium in the Trilateral Initiative," International Atomic Energy Agency (IAEA), Tech. Rep. IAEA-SM-367/17/02, 2001.
<https://digital.library.unt.edu/ark:/67531/metadc715943/>
- [54] Wikipedia. (2007) B83 nuclear bomb. Zuletzt besucht am 12.04.2017.
https://en.wikipedia.org/wiki/B83_nuclear_bomb
- [55] Wikimedia Commons. (2005) Components of a U.S. B83 thermonuclear weapon. Zuletzt besucht am 12.04.2017.
[https://commons.wikimedia.org/wiki/File:B83_nuclear_weapon_\(bw\).jpg](https://commons.wikimedia.org/wiki/File:B83_nuclear_weapon_(bw).jpg)
- [56] D. Cliff, H. Elbahtimy, and A. Persbo, "Verifying Warhead Dismantlement: Past, present, future," 2010.
<http://www.vertic.org/media/assets/Publications/VM9.pdf>
- [57] T. E. Shea, "Report on the Trilateral Initiative - IAEA verification of weapon-origin material in the Russian Federation & the United States," International Atomic Energy Agency, Tech. Rep., 2001.
<https://www.iaea.org/sites/default/files/publications/magazines/bulletin/bull43-4/43403054953.pdf>
- [58] L. R. Avens, J. E. Doyle, and M. F. Mullen, "The Fissile Material Transparency Technology Demonstration," Los Alamos National Laboratory, Tech. Rep. LA-UR-01-3570, July 2001.
<http://lib-www.lanl.gov/la-pubs/00796149.pdf>
- [59] U.S. Department of Energy (DoE), "Technology R&D for Arms Control," National Nuclear Security Administration, Defense Nuclear Nonproliferation Programs, Tech. Rep. ADA397451, April 2001.
<http://fissilematerials.org/library/doe01b.pdf>
- [60] T. E. Sampson, "Plutonium isotopic analysis using PC/FRAM in PANDA Addendum," Los Alamos National Laboratory, Tech. Rep., 2007.
<http://www.lanl.gov/orgs/n/n1/panda/>
- [61] U.K. Ministry of Defence. (2010) UK/Norway Initiative on nuclear warhead dismantlement verification. Ministry of Defence of the United Kingdom. Zuletzt besucht am 24.11.2016.
<https://www.gov.uk/government/publications/uk-norway-initiative-on-nuclear-warhead-dismantlement-verification--2>
- [62] K. Allen, S. Backe, D. Chambers, E. Day, S. Hustveit, K. Johansson, C. Marsh, T. Ramsøy, D. Reynolds, A. Richings, and H.-E. Torkildsen, "UK-Norway Initiative (UKNI) approach for the development of a Gamma Ray Attribute Measurement System with an integrated Information Barrier."

- https://www.ife.no/en/publications/2013/vern/uk-norway-initiative-ukni-approach-for-the-development-of-a-gamma-ray-attribute-measurement-system-with-an-integrated-information-barrier?set_language=en
- [63] UK-Norway Initiative (UKNI). Information Barrier - Can people trust equipment when they don't trust each other? Zuletzt besucht am 24.11.2016. <http://ukni.info/project/information-barrier/>
- [64] M. Götttsche, M. Kütt, G. Neuneck, and I. Niemyer, "Advancing Disarmament Verification Tools: A Task For Europe?" *Non-proliferation Papers*, no. 47, 10 2015. <https://www.nonproliferation.eu/web/documents/nonproliferationpapers/advancing-disarmament-verification-tools-a-task-fo-48.pdf>
- [65] Nuclear Threat Initiative. (2017) Verification Pilot Project - A Collaborative Effort to Unite Experts from around the World to Explore New Approaches to Verification. Zuletzt besucht am 03.08.2017. <http://www.nti.org/about/projects/verification-pilot-project/>
- [66] Nuclear Threat Initiative. (2017) International Partnership for Nuclear Disarmament Verification - Engaging a Diverse Group of States to Develop Innovative Monitoring and Verification Solutions. Zuletzt besucht am 03.08.2017. <http://www.nti.org/about/projects/international-partnership-nuclear-disarmament-verification/>
- [67] U.S. Department of State. (2017) International Partnership for Nuclear Disarmament Verification (IPNDV). Zuletzt besucht am 03.08.2017. <https://www.state.gov/t/avc/ipndv/>
- [68] G. A. Warren and R. S. Detwiler, "Nuclear Resonance Fluorescence For Material Verification In Dismantlement," Pacific Northwest National Laboratory, 902 Battelle Blvd, MSIN J4-65, Richland, WA, 99352 USA, Tech. Rep., 2011. https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:43127949
- [69] A. Glaser, B. Barak, and R. Goldston, "A New Approach to Nuclear Warhead Verification Using a Zero-Knowledge Protocol." Institute of Nuclear Materials Management (INMM), 2012. <http://www.princeton.edu/~aglaser/PU066-Glaser-Barak-Goldston-2012.pdf>
- [70] A. Glaser, B. Barak, and R. J. Goldston, "A zero-knowledge protocol for nuclear warhead verification," vol. 510, pp. 497–502, 2014. <http://www.nature.com/nature/journal/v510/n7506/full/nature13457.html>
- [71] S. Philippe, R. J. Goldston, A. Glaser, and F. d'Errico, "A physical zero-knowledge object-comparison system for nuclear warhead verification," vol. 7, no. 12890, 2016. <http://www.nature.com/articles/ncomms12890>

- [72] M. Götttsche, J. Schirm, and A. Glaser, “Low-resolution gamma-ray spectrometry for an information barrier based on a multi-criteria template-matching approach,” vol. 840, pp. 139–144, 2016.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900216310403>
- [73] M. Kütt, M. Götttsche, and A. Glaser, “Disarmament Hacking 2.0: Toward a Trusted, Open-Hardware Computing Platform for Nuclear Warhead Verification.” Institute for Nuclear Materials Management (INMM), 2016.
<http://www.princeton.edu/~malteg/CP6.pdf>
- [74] R. S. Kemp, A. Danagouliau, R. R. Macdonald, and J. R. Vavrek, “Physical cryptographic verification of nuclear warheads,” vol. 113, no. 31, pp. 8618–8623, 2016.
<http://www.pnas.org/content/113/31/8618>
- [75] P. Hausladen, M. A. Blackston, E. Brubaker, D. Chichester, P. Marleau, and R. J. Newby, “Fast neutron coded-aperture imaging of special nuclear material configurations.” Institute of Nuclear Materials Management (INMM), 2012.
https://www.nti.org/media/pdfs/Fast_Neutron_Coded_aperture_Imaging.pdf?_=1438283523
- [76] M. Götttsche and G. Kirchner, “Improving neutron multiplicity counting for the spatial dependence of multiplication: Results for spherical plutonium samples ,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 798, pp. 99–106, 2015.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900215008360>
- [77] A. L. Swift, B. R. Grogan, J. A. Mullens, J. P. Hayward, and J. T. Mihalczo, “Attributes from NMIS Time Coincidence, Fast-Neutron Imaging, Fission Mapping and Gamma-ray Spectrometry Data,” 2012.
https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:43126156
- [78] A. Caffrey, J. Cole, R. Gehrke, and R. Greenwood, “Chemical Warfare Agent High Explosive Identification Spectroscopy Neutron Induced Gamma-Rays,” *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 39, no. 5, pp. 1422–1426, October 1992.
<http://ieeexplore.ieee.org/document/259122/>
- [79] E. H. Seabury and A. J. Caffrey, “Explosives Detection and Identification by PGNAAs,” Idaho National Engineering and Environmental Laboratory, Bechtel BWXT Idaho, LLC, Tech. Rep., November 2004.
<http://dx.doi.org/10.2172/911698>
- [80] T. R. Twomey, A. J. Caffrey, and D. L. Chichester, “Nondestructive Identification of Chemical Warfare Agents and Explosives by Neutron Generator-Driven PGNAAs,” Idaho National Laboratory, Idaho Falls, Idaho 83415 USA, Tech. Rep., 2007.
https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:39009114

- [81] R. C. Runkle, D. L. Chichester, and S. J. Thompson, "Rattling nucleons: New developments in active interrogation of special nuclear material," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 663, no. 1, pp. 75–95, January 2012.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2011.09.052>
- [82] J. Church, D. Slaughter, S. Asztalos, P. Bilotto, M.-A. Descalle, J. Hall, T. Luu, D. Manatt, J. Mauger, E. Norman, D. Petersen, and S. Prussin, "Signals and Interferences in the Nuclear Car Wash," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. B 261, pp. 351–355, 2007.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X07007434>
- [83] J. Hall, S. Asztalos, P. Bilotto, J. Church, M.-A. Descalle, T. Luu, D. Manatt, G. Mauger, E. Norman, D. Petersen, P. J., S. Prussin, and D. Slaughter, "The Nuclear Car Wash: Neutron interrogation of cargo containers to detect hidden SNM," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 261, no. 1-2, pp. 337–340, August 2007.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2007.04.263>
- [84] D. Slaughter, M. Accatino, A. Bernstein, A. Dougan, J. Hall, A. Loshak, D. Manatt, B. Pohl, R. Walling, D. Weirup, and S. Prussin, "The nuclear car wash: a scanner to detect illicit special nuclear material in cargo containers," *IEEE Sensors Journal*, vol. 5, pp. 560–564, 2005.
http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs_all.jsp?arnumber=1468109
- [85] L. Szentmiklósi and Z. Kis, "Characterizing nuclear materials hidden in lead containers by neutron-tomography-driven prompt gamma activation imaging (PGAI-NT)," *Analytical Methods*, pp. 3157–3163, 2015.
<http://pubs.rsc.org/en/content/articlepdf/2015/ay/c5ay00199d>
- [86] R. Chrien, J. Kopecky, H. Liou, O. Wasson, J. Garg, and M. Dritsa, "Distribution of radiative strength from neutron capture by Pu-239," *Nuclear Physics A*, vol. 436, no. 2, pp. 205 – 220, 1985.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0375947485901964>
- [87] M. A. Lone, R. A. Leavitt, and D. A. Harrison, "Prompt Gamma Rays From Thermal-Neutron Capture," Atomic Energy of Canadas Limited Chalk River Nuclear Laboratories, Ontario, Canada, Tech. Rep., 1981.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0092640X8190005X>
- [88] P. Matussek, W. Michaelis, C. Weitkamp, and H. Woda, "Studies of Radiative Neutron Capture and Delayed Fission Gamma-Ray Spectra From Uranium and Plutonium as a Basis for new Non-Destructive Safeguards Techniques," in *Safeguards Techniques: Proceedings of a Symposium on Progress in Safeguards Techniques*, vol. 2, no. IAEA-SM133/33, 1970, p. 113.
<https://publikationen.bibliothek.kit.edu/270003886>

- [89] P. Matussek, H. Ottmar, C. Weitkamp, and H. Woda, "Study of Pu240 by Thermal Neutron Capture," in *Conference on Nuclear Structure Study with Neutrons*, 1972, pp. A43, 86.
<http://www.springer.com/de/book/9781461345015>
- [90] H. Ottmar, P. Matussek, C. Weitkamp, and H. Woda, "Average Width of E1 and M1 Radiative Transitions From Neutron Capture States in Pu-240," in *Conference on Nuclear Structure Study with Neutrons*, 1972, pp. A44, 88.
<http://www.springer.com/de/book/9781461345015>
- [91] C. Weitkamp, P. Matussek, and H. Ottmar, "Nondestructive Nuclear Fuel Assay by Neutron Capture Gamma-Ray Spectrometry," in *Neutron capture gamma-ray spectroscopy: Proceedings of the Second International Symposium on Neutron Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics*, Petten, The Netherlands, September 2-6 1974.
<https://cds.cern.ch/record/232633>
- [92] D. M. Drake, J. C. Hopkins, C. S. Young, and H. Condé, "Gamma-Ray-Production Cross Sections for Fast Neutron Interactions with Several Elements," *Nuclear Science and Engineering*, vol. 40, no. 2, p. 294, 1970.
http://www.ans.org/pubs/journals/nse/a_19690
- [93] P. Matussek, H. Ottmar, I. Piper, C. Weitkamp, and H. Woda, "Measurement of Gamma-ray Spectra from Thermal Neutron Interaction with U235," in *Conference on Nuclear Structure Study with Neutrons*, 1972, pp. A42, 84.
<http://www.springer.com/de/book/9781461345015>
- [94] H. Ottmar, P. Matussek, and I. Piper, "Radiative capture of thermal and epithermal neutrons in ^{235}U ," in *Second international symposium on neutron capture gamma-ray spectroscopy*, 1974, p. 658.
<https://cds.cern.ch/record/232633>
- [95] R. W. Peelle and F. C. Maienschein, "Spectrum of Photons Emitted in Coincidence with Fission of ^{235}U by Thermal Neutrons," *Physical Review C: Nuclear Physics*, vol. 3, no. 1, pp. 373–390, 1971.
<https://journals.aps.org/prc/abstract/10.1103/PhysRevC.3.373>
- [96] R. W. Peelle, F. C. M. W. Zobel, and R. O. Chester, "The Spectrum of Prompt Gamma Rays from the Fission of ^{235}U by Thermal Neutrons," in *Neutron Physics Division Annual Progress Report*, 1969, no. ORNL-4433, pp. 36–37, .
<http://technicalreports.ornl.gov/1969/3445603827526.pdf>
- [97] R. S. Booth and F. J. Muckenthaler, "Experimental Gamma-ray Spectra above 1 Mev from Thermal-Neutron Absorption in ^{235}U ," in *Neutron Physics Division Annual Progress Report*, 1969, no. ORNL-4433, pp. 36–37, .
<http://technicalreports.ornl.gov/1969/3445603827526.pdf>

- [98] S. Fetter and R. Mozley, "Emission and absorption of radiation," *Science & Global Security*, vol. 1, no. 3-4, pp. 265–285, 1990.
http://scienceandglobalsecurity.org/archive/1990/01/emission_and_absorption_of_rad.html
- [99] S. Fetter, V. A. Frolov, M. Miller, R. Mozley, O. F. Prilutsky, S. N. Rodionov, and R. Z. Sagdeev, "Detecting Nuclear Warheads," *Science & Global Security*, vol. 1, pp. 225–302, 1990.
http://scienceandglobalsecurity.org/archive/1990/01/detecting_nuclear_warheads.html
- [100] G. Molnár, Z. Révay, and T. Belgya, "Non-destructive interrogation of uranium using PGAA," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. 213, pp. 389–393, 2004.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X03016562>
- [101] J. Reijonen, K.-N. Leung, R. Firestone, J. English, D. Perry, A. Smith, F. Gicquel, M. Sun, H. Koivunoro, T.-P. Lou, B. Bandong, G. Garabedian, Z. Révay, L. Szentmiklosi, and G. Molnár, "First PGAA and NAA experimental results from a compact high intensity D-D neutron generator," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. 522, pp. 598–602, 2004.
<http://escholarship.org/uc/item/8j98c817>
- [102] Z. Révay, "Prompt gamma activation analysis of samples in thick containers," *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol. 276, pp. 825–830, 2008.
<http://akademai.com/doi/abs/10.1007/s10967-008-0639-1>
- [103] D. L. Chichester, E. H. Seabury, J. Wharton, and S. M. Watson, "INL Neutron Interrogation R&D: FY2010 MPACT End of Year Report," Office of Scientific and Technical Information, Tech. Rep., August 2010.
<http://www5vip.inl.gov/technicalpublications/documents/4680348.pdf>
- [104] International Atomic Energy Agency (IAEA) Nuclear Data Service (NDS). (1999-2003) Prompt Gamma-ray neutron Activation Analysis database (PGAA). Zuletzt besucht am 22.02.2016.
<https://www-nds.iaea.org/pgaa/>
- [105] Brookhaven National Laboratory (BNL) National Nuclear Data Center (NNDC). (2013, September) Thermal Neutron Capture Gamma's database (CapGam). Zuletzt besucht am 30.11.2016.
<http://www.nndc.bnl.gov/capgam/>
- [106] G. Chapman, "Gamma-ray Attenuation Coefficients for Germanium," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 52, no. 1, pp. 101 – 103, 1967.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0029554X67905630>

- [107] S. Levinson, A. Israelashvili, O. Shachal, O. Pelled, and U. German, “Background reduction of a HPGe-BGO anti-Compton system and its application to soil contamination monitoring,” no. INIS-IL-011. NRC-Negev, 2004.
https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:35066095
- [108] L. Szentmiklósi and A. N. Berlizov, “Characterization of the Budapest prompt-gamma spectrometer by Monte Carlo simulations,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, vol. 612, no. 1, pp. 122–126, 2009.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900209019123>
- [109] D. L. Anderson, T. Belgya, R. B. Firestone, Z. Kasztovszky, R. M. Lindstrom, G. L. Molnár, Z. Révay, and C. Yonezawa, *Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis with Neutron Beams*, G. L. Molnár, Ed., 2004.
<https://link.springer.com/book/10.1007/978-0-387-23359-8>
- [110] T. J. Paulus, T. W. Raudorf, B. Coyne, and R. Trammell, “Comparative Timing Performance of Large Volume HgGe Germanium Detectors,” *Institute of Electrical and Electronics Engineers (IEEE) Transactions on Nuclear Science*, vol. 28, no. 1, pp. 544–548, Feb 1981.
<http://ieeexplore.ieee.org/document/4331236/>
- [111] M. Wang, G. Audi, A. Wapstra, F. Kondev, M. MacCormick, and B. Pfeiffer, “The AME2012 atomic mass evaluation (II). Tables, graphs and references,” *Chinese Physics C*, vol. 36, no. 12, pp. 1603–2014, December 2012.
<http://amdc.in2p3.fr/masstable/Ame2012/Ame2012b-v2.pdf>
- [112] M. Chadwick, M. Herman, P. Obložinský, M. Dunn, Y. Danon, A. Kahler, D. Smith, B. Pritychenko, G. Arbanas, R. Arcilla, R. Brewer, D. Brown, R. Capote, A. Carlson, Y. Cho, H. Derrien, K. Guber, G. Hale, S. Hoblit, S. Holloway, T. Johnson, T. Kawano, B. Kiedrowski, H. Kim, S. Kunieda, N. Larson, L. Leal, J. Lestone, R. Little, E. McCutchan, R. MacFarlane, M. MacInnes, C. Mattoon, R. McKnight, S. Mughabghab, G. Nobre, G. Palmiotti, A. Palumbo, M. Pigni, V. Pronyaev, R. Sayer, A. Sonzogni, N. Summers, P. Talou, I. Thompson, A. Trkov, R. Vogt, S. van der Marck, A. Wallner, M. White, D. Wiarda, and P. Young, “ENDF/B-VII.1: Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 112, no. 12pp, pp. 2887–2996, December 2011.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S009037521100113X>
- [113] N. Soppera, M. Bossant, and E. Dupont, “JANIS 4: An Improved Version of the NEA Java-based Nuclear Data Information System,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 120, pp. 294–296, June 2014.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375214005237>
- [114] F. Gönnerwein. (2014) Neutron and Gamma Emission in Fission. Zuletzt besucht am 03.08.2017.
<https://t2.lanl.gov/fiesta2014/school.shtml>

- [115] R. E. Hunter and L. Stewart, “Evaluated Neutron-Induced Gamma-Ray production Cross Sections for ^{239}Pu and ^{240}Pu ,” Los Alamos Scientific Laboratory, Tech. Rep. LA-4901, 1972.
<https://www.osti.gov/scitech/biblio/4606258>
- [116] A. Chyzh, C. Y. Wu, E. Kwan, R. A. Henderson, J. M. Gostic, T. A. Bredeweg, R. C. Haight, A. C. Hayes-Sterbenz, M. Jandel, J. M. O’Donnell, and J. L. Ullmann, “Evidence for the stochastic aspect of prompt γ emission in spontaneous fission,” *Phys. Rev. C*, vol. 85, p. 021601, Feb 2012.
<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.85.021601>
- [117] I. Wolfram Research, *Mathematica*, version 9.0 ed., Wolfram Research, Inc., Champaign, Illinois, 2012.
<http://www.wolfram.com/mathematica/>
- [118] P. Kudejova, L. Canella, R. Schulze, N. Warr, A. Türler, and J. Jolie, “Characterization of the new PGAA and PGAI facility at the research reactor FRM II,” in *NRC7 - Seventh International Conference On Nuclear And Radiochemistry*, 2008.
https://www.researchgate.net/publication/237525696_Characterization_of_the_new_PGAA_and_PGAI_facility_at_the_research_reactor_FRM_II
- [119] W. Petry, “Advanced Neutron Instrumentation at FRM-II,” in *IGORR 9: Proceedings of the 9. meeting of the International Group On Research Reactors*, p. Ed., vol. IAEA Ref. Number 36019445, 2003, p. 346.
https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:36019445
- [120] Z. Révay, T. Belgya, Z. Kasztovszky, J. Weil, and G. Molnár, “Cold neutron PGAA facility at Budapest,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. 213, pp. 385–388, 2004.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X03016537>
- [121] J. Reijonen, “Compact Neutron Generators for Medical, Home Land Security, and Planetary Exploration,” in *Proceedings of 2005 Particle Accelerator Conference, Knoxville, Tennessee*, 2005.
<http://ieeexplore.ieee.org/document/1590356/>
- [122] J. G. Fantidis, B. V. Dimitrios, P. Constantinos, and V. Nick, “Fast and thermal neutron radiographies based on a compact neutron generator,” *Journal of Theoretical and Applied Physics*, vol. 6, no. 1, pp. 15–20, 2012.
<http://dx.doi.org/10.1186/2251-7235-6-20>
- [123] A. Miller, *Californium-252 as a Neutron Source for BNCT*. Springer Berlin Heidelberg, 2012, ch. 5, pp. 69–74.
https://link.springer.com/chapter/10.1007%2F978-3-642-31334-9_5
- [124] F. De Guarrini and R. Malaroda, “Two different technique measurements of the neutron spectrum of an AmBe source,” *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 92, no. 2, pp. 277–284, March 1971.
[http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X\(71\)90205-9](http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X(71)90205-9)

- [125] S. Schmidt, A. Schreyer, and H. Dosch, “Neutronenforschung in Deutschland: 2015-2045,” 2014.
https://www.helmholtz.de/fileadmin/user_upload/05_aktuelles/Strategiepapier_Neutronenforschung_in_Deutschland_2015-2045_LA_Materie_2014.pdf
- [126] European Spallation Source European Research Infrastructure Consortium. The Intensity Frontier: Developing World Class Detectors Using Boron. Zuletzt besucht am 27.01.2017.
<https://europenspallationsource.se/sites/default/files/multi-blade.pdf.pdf>
- [127] W. Liebert, “Viel Wind um HEU: Die Kritik am neuen Garchingener Forschungsreaktor verstummt nicht,” *Wissenschaft & Frieden*, vol. 13, no. 4, pp. 42–46, 1995.
<http://www.wissenschaft-und-frieden.de/seite.php?artikelID=1126>
- [128] J. Hoste, “Isotopic neutron sources for neutron activation analysis,” International Atomic Energy Agency (IAEA), Tech. Rep. IAEA-TECDOC-465, 1988.
https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:19088950
- [129] H. R. Vega-Carrillo, E. Manzanares-Acuña, A. M. B. Ferreiro, and A. C. Nuñez, “Neutron and gamma-ray spectra of $^{239}\text{PuBe}$ and $^{241}\text{AmBe}$,” *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 57, pp. 167–170, August 2002.
<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0969804302000830>
- [130] Mirion Technologies (Canberra), *Gamma and X-Ray Detection*, 2014.
<http://www.canberra.com/literature/fundamental-principles/pdf/Gamma-Xray-Detection.pdf>
- [131] H. Lemmel and C. Westcott, “Fission and absorption g-factors of ^{241}Pu ,” *Journal of Nuclear Energy*, vol. 21, no. 5, pp. 417–424, May 1967.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0022310767900482>
- [132] Japan Atomic Energy Agency (JAEA), Nuclear Data Center (NDC). Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 4.0 (JENDL-4). Zuletzt besucht am 03.08.2017.
<http://wwwndc.jaea.go.jp/jendl/j40/j40f10.html>
- [133] K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Iwamoto, A. Ichihara, S. Kunieda, S. Chiba, K. Furutaka, N. Otuka, T. Ohasawa, T. Murata, H. Matsunobu, A. Zukeran, S. Kamada, and J.-i. Katakura, “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering,” *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 48, no. 1, pp. 1–30, 2012.
<http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/18811248.2011.9711675>
- [134] D. H. White, R. W. Hoff, H. G. Börner, K. Schreckenbach, F. Hoyler, G. Colvin, I. Ahmad, A. M. Friedman, and J. R. Erskine, “Nuclear structure of ^{241}Pu from neutron-capture, (d,p)-, and (d,t)-reaction measurements,”

- Physical Review C*, vol. 57, no. 3, p. 1112, 1998.
<https://journals.aps.org/prc/abstract/10.1103/PhysRevC.57.1112>
- [135] V. V. Verbinski, H. Weber, and R. E. Sund, “Prompt Gamma Rays from $^{235}\text{U}(\text{n},\text{f})$, $^{239}\text{Pu}(\text{n},\text{f})$, and Spontaneous Fission of ^{252}Cf ,” *Physical Review C*, vol. 7, no. 3, pp. 1173–1185, March 1973.
<https://journals.aps.org/prc/abstract/10.1103/PhysRevC.7.1173>
- [136] A. Oberstedt, T. Belgya, R. Billnert, R. Borcea, T. Brys, W. Geerts, A. Göök, F.-J. Hamsch, Z. Kis, T. Martinez, S. Oberstedt, L. Szentmiklosi, K. Takács, , and M. Vidali, “Improved values for the characteristics of prompt-fission gamma-ray spectra from the reaction $^{235}\text{U}(\text{nth},\text{f})$,” *Physical Review C*, vol. 87, p. 051602(R), May 2013.
<http://journals.aps.org/prc/abstract/10.1103/PhysRevC.87.051602>
- [137] F. Pleasonton, R. L. Ferguson, and H. W. Schmitt, “Prompt Gamma Rays Emitted in the Thermal-Neutron-Induced Fission of U^{235} ,” *Physical Review C*, vol. 6, pp. 1023 – 1039, 1972.
<http://journals.aps.org/prc/abstract/10.1103/PhysRevC.6.1023>
- [138] B. Becker, P. Talou, T. Kawano, Y. Danon, and I. Stetcu, “Monte Carlo Hauser-Feshbach predictions of prompt fission gamma rays: Application to $\text{nth} + ^{235}\text{U}$, $\text{nth} + ^{239}\text{Pu}$ and $^{252}\text{Cf}(\text{sf})$,” *Physical Review C*, vol. 87, p. 014617, 2013.
<http://journals.aps.org/prc/abstract/10.1103/PhysRevC.87.014617>
- [139] M. Lebois, J. N. Wilson, P. Halipré, A. Oberstedt, S. Oberstedt, P. Marini, C. Schmitt, S. J. Rose, S. Siem, M. Fallot, A. Porta, and A.-A. Zakari, “Comparative measurement of prompt fission gamma-ray emission from fast-neutron-induced fission of ^{235}U and ^{238}U ,” *Physical Review C*, vol. 92, p. 034618, September 2015.
<http://journals.aps.org/prc/abstract/10.1103/PhysRevC.92.034618>
- [140] A. Oberstedt, T. Belgya, R. Billnert, F.-J. Hamsch, Z. Kis, T. M. Perez, S. Oberstedt, L. Szentmiklosi, K. Takács, and M. Vidali, “New Prompt Fission Gamma-ray Spectral Data and its Implication on Present Evaluated Nuclear Data Files,” *Physics Procedia*, vol. 47, pp. 156–165, 2013, scientific Workshop on Nuclear Fission Dynamics and the Emission of Prompt Neutrons and Gamma Rays, Biarritz, France, 28-30 November 2012.
<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1875389213004525>
- [141] A. Oberstedt, R. Billnerta, and S. Oberstedt, “Systematics of prompt fission gamma-ray spectra characteristics,” in *GAMMA-2 Scientific Workshop on the Emission of Prompt Gamma-Rays in Fission and Related Topics*, ser. Physics Procedia, S. Oberstedt, Ed., vol. 59, 2014, pp. 24–30.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1875389214004799>
- [142] S. J. Rose, F. Zeiser, A. Hafreager, G.M.Tveten, A. Oberstedt, S. Oberstedt, J. N. Wilson, C. Schmitt, and S. Siem, “Energy dependence of the prompt fissi-

- on gamma-ray emission from the (d,p)-induced fission of $^{234}\text{U}^*$ and $^{240}\text{Pu}^*$,” *in preparation*, 2017.
- [143] M. Mitchell, T. Winchen, and T. Richter. (2002) Engauge digitizer 5.1. Github. Zuletzt besucht am 12.04.2017.
<http://markummitchell.github.io/engauge-digitizer/>
- [144] T. R. England and B. F. Rider, “Evaluation and compilation of fission product yields,” Los Alamos National Laboratory, Tech. Rep., October 1993.
<http://ie.lbl.gov/fission/endl349.pdf>
- [145] R. Firestone. Table of Radioactive Isotopes. Lawrence Berkely National Laboratory.
<http://ie.lbl.gov/toi/radSearch.asp>
- [146] J. H. Hubbell and S. M. Seltzer. (1990) 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. Radiation Physics Division, PML, NIST.
<http://www.nist.gov/pml/data/xraycoef/index.cfm>
- [147] Radiation Safety Information Computational Center (RSICC). MCNP6, MCNP5 and MCNPX. Zuletzt besucht am 05.04.2017.
<https://rsicc.ornl.gov/codes/ccc/ccc8/ccc-810.html>
- [148] S. A. Pozzi, E. Padovani, and M. Marseguerra, “MCNP-PoliMi: a Monte-Carlo code for correlation measurements,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 513, no. 3, pp. 550–558, 2003.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900203023027>
- [149] Los Alamos National Laboratory (LANL) Monte Carlo Code Group. (2003) MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code. Los Alamos National Laboratory. Zuletzt besucht am 12.04.2017.
<https://mcnp.lanl.gov/>
- [150] D. Rothmaier, “Neutroneninduzierte Neutronen in U-235 und U-238,” Master’s thesis, Universität Hamburg, 2015.
<https://www.znf.uni-hamburg.de/media/documents/archiv-qualifikationsarbeiten/bachelorarbeit-david-rothmaier.pdf>
- [151] A. Seifert, W. K. Hensley, E. R. Siciliano, and W. K. Pitts, “Fast neutron sensitivity with HPGe,” in *2007 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*, vol. 2, Oct 2007, pp. 1175–1180.
<http://ieeexplore.ieee.org/document/4437216/>
- [152] Brookhaven National Laboratory (BNL) National Nuclear Data Center (NNDC). (2013, September) Thermal Neutron Capture Gamma’s database (CapGam): 5600-5800 keV. Brookhaven National Laboratory (BNL) National

- Nuclear Data Center (NNDC). Zuletzt besucht am 30.11.2016.
<http://www.nndc.bnl.gov/capgam/bye/page49.html>
- [153] Brookhaven National Laboratory (BNL) of the National Nuclear Data Center (NNDC). (2013, September) Thermal Neutron Capture Gamma's database (CapGam): 6000-7000 keV. Brookhaven National Laboratory (BNL) National Nuclear Data Center (NNDC). Zuletzt besucht am 30.11.2016.
<http://www.nndc.bnl.gov/capgam/bye/page51.html>
- [154] Brookhaven National Laboratory (BNL) National Nuclear Data Center (NNDC). Uran-238 Energielevel und Gammaübergänge (Search parameters: Nucleus:238U). Zuletzt besucht am 30.03.2017.
https://www.nndc.bnl.gov/nudat2/indx_adopted.jsp
- [155] International Atomic Energy Agency (IAEA) - Nuclear Data Section (NDS). LiveChart of Nuclides. Zuletzt besucht am 30.03.2017.
<https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>
- [156] G. Toth and I. Benkovics, "HEU-LEU Core Conversion at Budapest Research Reactor," *International Nuclear Safety Journal*, vol. 3, pp. 60–67, 2014.
<http://nuclearsafety.info/international-nuclear-safety-journal/index.php/INSJ/article/view/39>
- [157] Budapest Neutron Centre. (2014) Budapest Research Reactor. Zuletzt besucht am 13.01.2017.
<http://www.bnc.hu/?q=node/6>
- [158] S. Oberstedt, R. Billnert, A. Gatera, W. Geerts, P. Halipré, F.-J. Hamsch, M. Lebois, A. Oberstedt, P. Marini, M. Vidali, and J. Wilson, "Prompt Fission Gamma-ray Spectra Characteristics - A First Summary," *Physics Procedia*, vol. 64, pp. 83–90, 2015, scientific Workshop on Nuclear Fission Dynamics and the Emission of Prompt Neutrons and Gamma Rays, THEORY-3.
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1875389215001273>
- [159] L. Szentmiklósi, Z. Kis, T. Belgya, and A. N. Berlizov, "On the design and installation of a Compton-suppressed HPGe spectrometer at the Budapest neutron-induced prompt gamma spectroscopy (NIPS) facility," *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol. 298, pp. 1605–1611, 12 2013.
<http://link.springer.com/article/10.1007/s10967-013-2555-2>
- [160] T. Belgya, Z. Révay, and G. L. Molnár, "Gamma-ray background at the Budapest PGAA facility," *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol. 265, pp. 181–191, 07 2005.
<http://link.springer.com/article/10.1007/s10967-005-0808-4>
- [161] J. R. Lemley, L. Forman, W. R. Kane, P. Vanier, W. Kiehl, and J. Wright, "Confirmatory Measurements for Uranium in Nuclear Weapons by High-Resolution Gamma-Ray Spectrometry (HRGS)," Brookhaven National Lab., Upton, NY (US), Tech. Rep. BNL-66293, July 1999.
<http://www.osti.gov/scitech/biblio/750764>

- [162] A. J. Peurrung, "Predicting ^{232}U Content in Uranium," Pacific Northwest National Laboratory, Tech. Rep. PNNL-12075, December 1998.
http://www.pnl.gov/main/publications/external/technical_reports/PNNL-12075.pdf
- [163] N. Wiberg, A. F. Holleman, and E. Wiberg, *Lehrbuch der Anorganischen Chemie*, N. Wiberg, Ed. de Gruyter, 2008.
<https://www.degruyter.com/viewbooktoc/product/19732>

Abbildungsverzeichnis

1.1	Kernwaffenbestände der Nichtverbreitungsvertrag-Kernwaffenstaaten von 1945 bis 2014.	3
1.2	Obergrenzen der stationierten strategischen Kernwaffen und Trägersysteme gemäß der Rüstungskontrollverträge zwischen den USA und der SU/RF.	4
1.3	Abrüstung eines nuklearen Gefechtskopfes von dessen Stationierung bis zur Lagerung des Spaltmaterials.	8
1.4	Schema einer Informationsbarriere.	10
1.5	Komponenten einer Thermonuklearen Kernwaffe des Typs B-83 der USA.	11
1.6	Publizierte spezifische hoch-energetische Gamma-Intensitäten für thermische Neutroneneinfänge in Plutonium-239.	17
2.1	Energieabhängige Gamma Absorption in Germanium.	22
2.2	Ergebnis der Wechselwirkung von Gammastrahlung in einem Germaniumdetektor.	23
2.3	Schematische Darstellung eines Neutroneneinfangs und einer induzierten Spaltung.	24
2.4	Wechselwirkungsquerschnitte für Reaktionen von Neutronen an Plutonium-239.	25
2.5	Kontinuum der Neutroneneinfangsgammas.	26
2.6	Hoch-energetischen Gamma-Intensitäten pro Neutroneneinfang in Plutonium-239 und Plutonium-240.	27
3.1	Schema der analytischen Abschätzung.	29
3.2	Mittlere freie Weglänge der Neutronen in den vier Isotopen Uran-235, Uran-238, Plutonium-239 und Plutonium-240.	34
3.3	Effizienz des in den analytischen Abschätzungen verwendeten Germaniumdetektors.	36
3.4	Für die analytischen Abschätzungen verwendete Energieverteilung der Gammastrahlung aus induzierter Spaltung in Plutonium.	42
3.5	Von Matussek <i>et al.</i> gemessenes und entfaltetes neutroneninduziertes Gammaspektrum von Plutonium.	46
3.6	Von Matussek <i>et al.</i> gemessenes und entfaltetes neutroneninduziertes Gammaspektrum von Uran.	47

3.7	Evaluierung der Peak-zu-Untergrund-Verhältnisse für verzögerte Spaltgammas aus thermischen Neutroneneinfängen in Uran-235, Uran-238, Plutonium-239 und Plutonium-240.	48
3.8	Analytische Abschätzungen für den Forschungsreaktor München-II und Uran	51
3.9	Analytische Abschätzungen für den Forschungsreaktor München-II und 1 Gramm Uran mit <i>Chopper</i> und n- γ -Anti-Koinzidenz	52
3.10	Analytische Abschätzungen für den Forschungsreaktor München-II und Plutonium	54
3.11	Analytische Abschätzungen für den Forschungsreaktor München-II und Plutonium mit zusätzlicher Blei-Abschirmung	54
3.12	Analytische Abschätzungen für den Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und Uran	56
3.13	Analytische Abschätzungen für den Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und 1 Gramm Uran, gepulst und mit n- γ -Anti-Koinzidenz	57
3.14	Analytische Abschätzungen für den Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und Plutonium	58
3.15	Analytische Abschätzungen für den Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und 1 Gramm Plutonium, gepulst und mit n- γ -Anti-Koinzidenz	59
3.16	Analytische Abschätzungen für den thermalisierten Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und Plutonium	60
3.17	Analytische Abschätzungen für die Americium-241/Beryllium Quelle und Uran	62
3.18	Analytische Abschätzungen für die Americium-241/Beryllium Quelle und Uran mit <i>Chopper</i> und n- γ -Anti-Koinzidenz	63
3.19	Analytische Abschätzungen für die Americium-241/Beryllium Quelle und Plutonium	64
3.20	Analytische Abschätzungen für die Americium-241/Beryllium Quelle und Plutonium mit <i>Chopper</i> und n- γ -Anti-Koinzidenz	64
3.21	Analytische Abschätzungen für die thermalisierte Americium-241/Beryllium Quelle und Plutonium	65
3.22	Analytische Abschätzungen für die thermalisierte Americium-241/Beryllium Quelle und Plutonium mit <i>Chopper</i> und n- γ -Anti-Koinzidenz	67
4.1	Versuchsaufbaus mit dem Deuterium-Tritium Neutronengenerator und abgereichertem Uran.	73
4.2	Aktives Hintergrundspektrum mit dem Deuterium-Tritium Neutronengenerator.	74
4.3	Gammaspektrum des abgereicherten Urans, bestrahlt mit dem Deuterium-Tritium Neutronengenerator.	76
4.4	Gammaspektrum des abgereicherten Urans, gepulst bestrahlt mit dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator.	78
4.5	Gammaspektrum des abgereicherten Urans, kontinuierlich bestrahlt mit dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator.	79
4.6	Versuchsanordnung mit Plutonium-239 am BNC Forschungsreaktors.	81

4.7	Aktives Hintergrundspektrum mit der Ionisationskammer im Neutronenstrahl des BNC Forschungsreaktors.	83
4.8	Gammaspektrum der Plutonium-239 Probe im Neutronenstrahl des BNC Forschungsreaktors.	85
4.9	Photographie der Versuchsanordnung mit der Americium-241/Beryllium Quelle.	87
4.10	Skizze der Versuchsanordnung mit der Americium-241/Beryllium Quelle.	89
4.11	Passives Hintergrundspektrum der Versuchsanordnung mit der Americium-241/Beryllium Quelle.	90
4.12	Aktives Hintergrundspektrum der Versuchsanordnung mit der Americium-241/Beryllium Quelle.	91
4.13	Gammaspektrum des mit der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle bestrahlten Plutoniumdioxids.	93
4.14	Gammaspektrum der mit der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle bestrahlten Plutoniumprobe Pu5.	94
4.15	Gammaspektrum der mit der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle bestrahlten Plutoniumprobe Pu20.	96
4.16	Gammaspektrum der Urandioxid-Probe, bestrahlt mit der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle.	98
4.17	Gammaspektrum der metallischen Uranprobe, bestrahlt mit der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle.	100
4.18	Gammaspektrum der Triuranooxid-Probe, bestrahlt mit der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle.	101
A.1	Datenblatt der verwendeten Deuterium-Deuterium und Deuterium-Tritium Neutronengeneratoren.	140
A.2	Datenblatt der verwendeten radioaktiven Americium-241/Beryllium Quelle.	141
A.3	Skizze des Polyethylenkastens mit Maßangaben.	142
A.4	Skizze eines Schnittes durch den Polyethylenkasten und den Neutronenquellen-Halter.	142
A.5	Photographie des offenen Polyethylenkastens.	143
A.6	Gammaspektrum der mit der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle bestrahlten Plutoniumprobe Pu20 von 5 MeV bis 5.2 MeV.	143
B.1	Analytische Abschätzungen für den Forschungsreaktor München-II und Plutonium mit <i>Chopper</i> und n- γ -Anti-Koinzidenz	145
B.2	Analytische Abschätzungen für den Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und hoch-angereichertes Uran (HEU) ohne und mit <i>Chopper</i> und n- γ -Anti-Koinzidenz.	146
B.3	Analytische Abschätzungen für den thermalisierten Deuterium-Deuterium Neutronengenerator und Plutonium mit <i>Chopper</i> und n- γ -Anti-Koinzidenz.	147
B.4	Analytische Abschätzungen für die thermalisierte Americium-241/Beryllium Quelle und hoch-angereichertes Uran (HEU) ohne und mit <i>Chopper</i> und n- γ -Anti-Koinzidenz.	148

B.5 Wechselwirkungsquerschnitte für Reaktionen von Neutronen an Plutonium-240, Uran-235 und Uran-238. 149

Tabellenverzeichnis

3.1	In den analytischen Abschätzungen verwendete Neutronenquellen.	31
3.2	In den analytischen Abschätzungen verwendete Targets.	33
3.3	Mittlere frei Weglänge von Neutronen mit den Energien 25 meV, 2.5 MeV und 4.5 MeV in Uran-235, Uran-238, Plutonium-239 und Plutonium-240.	35
3.4	In den analytischen Abschätzungen verwendete Westcott g Faktoren.	38
3.5	Ausgewählte für die analytischen Abschätzungen verwendete Gamma-Intensitäten pro Neutroneneinfang.	40
3.6	Übersicht der abgeschätzten Neutronenquellen.	50
4.1	Übersicht der in den drei Experimenten verwendeten Neutronenquellen und Spaltmaterial-Targets.	72
4.2	Übersicht über die Messungen am BNC mit Plutonium-239.	84
4.3	Übersicht der Plutonium-Targets, die mit der Americium-241/Beryllium Quelle bestrahlt wurden.	92
4.4	Übersicht der Plutonium-Targets, die mit der Americium-241/Beryllium Quelle bestrahlt wurden.	97
4.5	Potentiell störende Gammaübergänge nach Neutroneneinfängen in Nicht-Spaltmaterial Isotopen.	104
B.1	Hoch-energetische Gamma-Intensitäten für Neutroneneinfänge in Plutonium-239.	150
B.2	Hoch-energetische Gamma-Intensitäten für Neutroneneinfänge in Plutonium-240.	151
B.3	Hoch-energetische Gamma-Intensitäten für Neutroneneinfänge in Uran-235.	152
B.4	Hoch-energetische Gamma-Intensitäten für Neutroneneinfänge in Uran-238.	154
B.5	Targets, wie sie im <i>Mathematica</i> Skript zur Auswahl stehen.	173
B.6	Neutronenquellen, wie sie im <i>Mathematica</i> Skript zur Auswahl stehen.	174

Nomenklatur

BNC	Budapest Neutron Centre
BNL	Brookhaven National-Labor
CBRN Gefahrenabwehr	Chemische, Biologische, Radiologische und Nukleare Gefahrenabwehr (Englisch: Chemical, Biological, Radiological and Nuclear defense), auch CBRNE mit der Erweiterung Explosives, Sprengstoffe
cps	counts per second - Ereignisse pro Sekunde
D-D ENG	Deuterium-Deuterium Elektronischer Neutronengenerator
D-T ENG	Deuteron-Tritium Elektronischer Neutronengenerator
DSF	Deutsche Stiftung Friedensforschung
ENDF	Evaluated Nuclear Data File - Kartei evaluierter nukleare Daten
FMCT	Fissile Material Cut-off Treaty - Vertrag über das Verbot der Herstellung von spaltbarem Material
FNDA	Fast Neutron Detectors and Applications - schnelle Neutronendetektoren und Verfahren
FWHM	full width at half maximum - Halbwertsbreite
HEU	high enriched uranium - hoch angereichertes Uran, also ab einer Uran-235 Anreicherung von 20 Prozent
HPGe	hochreiner Germaniumdetektor (Englisch: High-Purity Germanium detector)
IAEO	Internationale Atomenergie Organisation, englisch: IAEA - International Atomic Energy Agency
ICAN	International Campaign to Abolish Nuclear Weapons - Internationale Kampagne zur Abrüstung von Kernwaffen
ICBM	Intercontinental Ballistic Missile - Interkontinentalrakete

IFSH	Institut für Friedensforschung und Sicherheitspolitik, eigenständige Forschungseinrichtung an der Universität Hamburg
INT	Institut für Naturwissenschaftlich-Technische Trendanalysen INT
IPFM	International Panel on Fissile Materials - Internationales Forum zu Spaltmaterialien
JaNIS	Java-based Nuclear data Information System - Java-basiertes Informationssystem für nukleare Daten
JRC-KRU	Joint Research Centre Karlsruhe, auf Deutsch: Gemeinsame Forschungsstelle (GFS) Karlsruhe. Früher: Institut für Transurane (ITU)
KWS	Kernwaffenstaat, Englisch: Nuclear Weapon State (NWS)
LEU	low enriched uranium - niedrig angereichertes Uran, also bis zu einer Uran-235 Anreicherung von gerade noch unter 20 Prozent
live time	um die Totzeit korrigierte Dauer einer Messung (in Abgrenzung zur tatsächlichen Messdauer, der real time)
MCNP	Monte Carlo N-Particle code - Programm für Monte-Carlo-Simulationen mit Neutronen
MIRV	Multiple Independently targetable Reentry Vehicle, auf Deutsch: unabhängig zielbarer Mehrfach-Wiedereintrittskörper
MIT	Massachusetts Institute of Technology - Institut für Technologie Massachusetts
NAA	Neutronen Aktivierungs-Analyse
NDS	Nuklearer Daten Service
NEA	Nuclear Energy Agency - Nukleare Energie Agentur innerhalb der Organisation für wirtschaftliche Zusammenarbeit und Entwicklung (OECD)
NIPS	Neutronen-Induzierte Prompte (Gamma) Spektroskopie
NKWS	Nichtkernwaffenstaat, Englisch: Non-Nuclear Weapon State (NNWS)
NMIS	Nuclear Materials Identification System - Identifikationssystem für nukleare Materialien

NNDC	National Nuclear Data Center - Nationales nukleares Datenzentrum des Brookhaven Nationallabors
NNDC	National Nuclear Data Center
NPT	Non-Proliferation Treaty, Deutsch: Nichtverbreitungsvertrag (NVV)
NVV	Nichtverbreitungsvertrag, Englisch: Non-Proliferation Treaty (NPT)
PFGS	Prompt Fission Gamma-ray Spectroscopy
PFNA	Proximal Femoral Nail Antirotaion™
PGAA	Prompter Gamma-Aktivierungs-Analyse
PGAI-NT	Prompt Gamma Activation Imaging with Neutron-Tomography - Prompte Gamma Aktivitäts-Bildgebung mit Neutronentomographie
PGNAA	Prompte Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse
RCM	Radiochemie München
real time	tatsächliche (reale) Dauer einer Messung (in Abgrenzung zur Totzeit-korrigierten live time)
Spaltmaterial	auch Spaltstoff und auf Englisch fissile material. Isotope die durch Neutronen gespalten werden können und dabei wiederum Neutronen abgeben. Die wichtigsten Spaltmaterialien sind Uran-235 und Plutonium-239. In der vorliegenden Arbeit werden insbesondere diese beiden Isotope und ihre Schwesterisotope Uran-238 und Plutonium-240 als Spaltmaterial bezeichnet.
START	Strategic Arms Reduction Treaty - Verträge zur Reduzierung strategische Kernwaffen. Es gibt START I, START II und New START.
T-T ENG	Tritium-Tritium Elektronischer Neutronengenerator
UNCD	United Nations Conference of Disarmament - Konferenz zur Abrüstung oder auch Genfer Abrüstungskonferenz
USA	United States of America - Vereinigte Staaten von Amerika
WGPu	waffengrädiges Plutonium
WGU	Waffen-Grädiges Uran
ZNF	Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum für Naturwissenschaft und Friedensforschung der Universität Hamburg

Anhang A

Ergänzungen zu den Experimenten

A.1 Elektronische Neutronengeneratoren

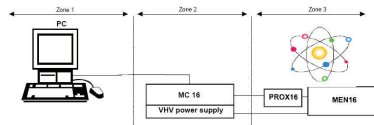
ANHANG A. ERGÄNZUNGEN ZU DEN EXPERIMENTEN

Anlage NG 04

Systemübersicht, Komponenten und Spezifikationen

- Systemübersicht**
- Der GENIE16c Neutronen-Generator stellt einen steuerbaren Neutronenfluss im kontinuierlichen und gepulsten Betrieb zur Verfügung. Das System besteht aus den folgenden Sub-Systemen und Komponenten:
- einem MEN 16c Neutronen-Emissions-Modul mit Gasisolation, das eine Soditrow/Soditlog Neutronenröhre enthält
 - einem MEN PROX-Modul (proximity module), dem PROX 16
 - einem MC 16 tragbarem Kontrollmodul und einer Hochspannungsversorgung (VHV)
 - einem Steuerungscomputer zur Fernbedienung
 - Verbindungskabeln

Blockdiagramm des Neutronengenerators GENIE16c



Der GENIE16c Neutronengenerator lässt sich in drei Zonen einteilen:

- Zone 1, der PC
- Zone 2, der MC 16 und die VHV Hochspannungsversorgung
- Zone 3, der MEN 16

Zone 2 und 3 können ca. 10 m auseinander liegen (die Kabel sind ca. 15 m lang), Zone 1 und 2 etwa 10 m (100 m bei Benutzung von RS 485). Zone 3 enthält das Emissionsmodul, das in

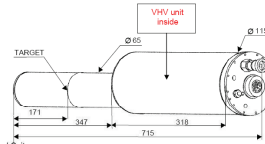
NG04-1

einer Strahlenabschirmung platziert sein muss. Der Operateur hat typischerweise nur Zugang zu Zone 2 um den Schliessschalter am MC 16 zu bedienen und zu Zone 1 um den Generator über den PC zu steuern.

Beschreibung der Module

Neutron Emitting Module (MEN16C)

Emitting probe in stainless steel with SF6 insulation, SODILOG sealed neutron tube inside	
Size / Weight:	Ø 65 mm / Ø115 - 685 mm length: 8kg
Min. Distance to target:	less than 32 mm target plane is at 150 mm from the low voltage side
Tritium content:	120 GBq
Average power:	Limited to 10W; ventilation required from 5W
Operating T° / Storage T°:	0 to 80 °C / -20 to 70 °C
Refurbishment:	by changing the tube
Connections:	No HVH connection-2KV dry connection 1.5 meter cable connected to the control suitcase One connection for the earth



Control Suitcase

Size / Weight:	460 x 340 x 180 mm - 7 kg	
Safety:	2 auto insulated safety loops- Safety key	
Functions:	Neutron flux stabilization by Working point Electronic -Regulation System - Operating timer	
Pulsing parameters:	Pulse rate: adjustable from 100 Hz to 10 kHz (20kHz on request) and continuous emission. Duty factor: adjustable between 5% to continuous. Neutron pulse rise and fall time < 1.5 µsec	
Output:	Neutron emission and modulation output signal 5 V TTL BNC type Data link RS232 or RS485 Earth	
Power supply:	818 V DC cigar lighter connection 230 V 50 Hz or 115V 60Hz adapter (on request) < 100 Watts	

NG04-2

GENIE16 Remote Control System

Data link:	RS232 for short distance remote control (10 meters) RS485 for long distance remote control (upon request - up to 1000 meters - requires a RS485 interface board inside the computer)
Cable:	10 meters RS232 type or 100 meters RS485 type (upon request)
Output:	2 TTL output for synchronization with neutron pulses
Software:	Genie 16 software for Windows 95, Windows 98 or Windows NT (floppy disc) GENIE16 Active™ driver
Functions:	Programming of Neutron output (electrical operating point) Pulsing parameters and duty factor. Neutron emission time.
Information on:	Safety loops and alarms statuses Measurement of main parameters The log of alarms and events induced by the operator

Tabelle A04.1 - Technische Daten

12.1.1. Neutron emission:

- MEN16 (C) equipped with a DT sealed neutron tube
These values are given for a nominal power value.
Neutron Energy: 14 MeV
Continuous or average neutron yield: $1 \cdot 10^7$ n/s/4msr ($\pm 10\%$)
Maximum neutron yield: $2 \cdot 10^7$ n/s/4msr
- MEN16 (C) equipped with a DD sealed neutron tube
These values are given for a nominal power value.
Neutron Energy: 2.5 MeV
Continuous or average neutron yield: $1 \cdot 10^7$ n/s/4msr ($\pm 10\%$)
Maximum neutron yield: $2 \cdot 10^7$ n/s/4msr

NG04-3

Abbildung A.1 – Datenblatt der verwendeten Deuterium-Deuterium und Deuterium-Tritium Neutronengeneratoren, persönliche Kommunikation mit Theo Köble und Olaf Schumann.

A.2 Radioaktive Neutronenquelle

²⁴¹Americium/Beryllium

Neutronen-Quelle

Emissionsdaten

Neutronen-Emission:	ca. $2,2 \times 10^6$ n/s pro Ci ca. 6×10^7 n/s pro TBq
Gamma-Dosisleistung:	ca. 2,5 mR/h in 1 m pro Ci Luft-Kerma in 1 m ca. 22 μ Gy/h pro Ci
Neutronen-Dosisleistung:	2,2 mrem/h in 1 m pro Ci 22 μ Sv/h in 1 m pro Ci

Anmerkung

α ,n-Beryllium-Neutronen-Quellen emittieren auch eine signifikante Anzahl von niederenergetischen Neutronen (~23 % unter 1 MeV mit einer mittleren Energie von 400 keV)

Quellen-Aufbau

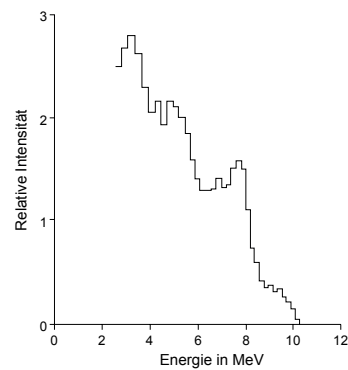
Kompaktierte Mischung aus AmO₂ und Beryllium-Metall-Pulver, doppelt umschlossen in geschweißtem Edelstahl.

Aktivität	Emissionsrate*	Kapsel-	Code
GBq	Ci	n/s	typ
370	10	22,0 x 10 ⁶	X.14 AMN.25

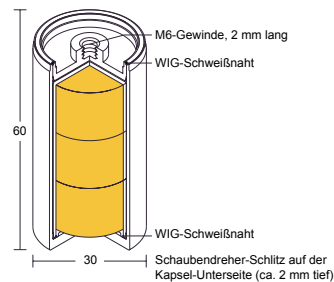
* Toleranz ± 10 %

Neutronen-Spektrum

Quelle wurde hergestellt und vermessen bei AEA Technology QSA mit einem Stilben-Kristall und Pulse-shape-Diskriminierung.
Literaturnachweis: LORCH, E. A., Intl. J. Appl. Radiat. Isotopes 24, 590, 1973.



X.14



Sicherheitsprüfungen

Kapsel	IAEA-Zertifikat	Modell-Nr.
X.14	GB/11/S-85	AMN.PE4

Abbildung A.2 – Datenblatt der verwendeten radioaktiven Americium-²⁴¹/Beryllium Neutronenquelle, persönliche Kommunikation mit Christoph Lierse von Gostomski, 2015.

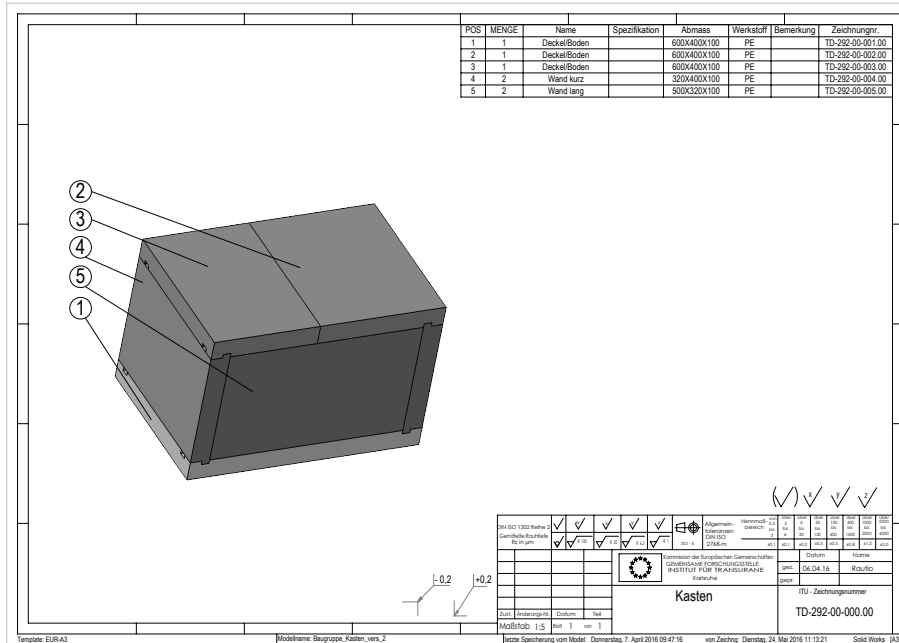


Abbildung A.3 – Skizze des Polyethylenkastens mit Maßangaben. Die Wände sind mit Nut 320 mm hoch, wobei jedoch jeweils oben und unten 10 mm Nut in den Deckel, beziehungsweise in den Boden greifen. Deckel und Boden sind jeweils 100 mm dick, wobei 50 mm in die Kastenwand greifen, siehe Abbildung A.4. Damit ergibt sich eine Gesamthöhe von $320 \text{ mm} - 10 \text{ mm} - 10 \text{ mm} + 50 \text{ mm} + 50 \text{ mm} = 400 \text{ mm}$. Grafik angefertigt von Jouni Rautio, JRC-KRU.

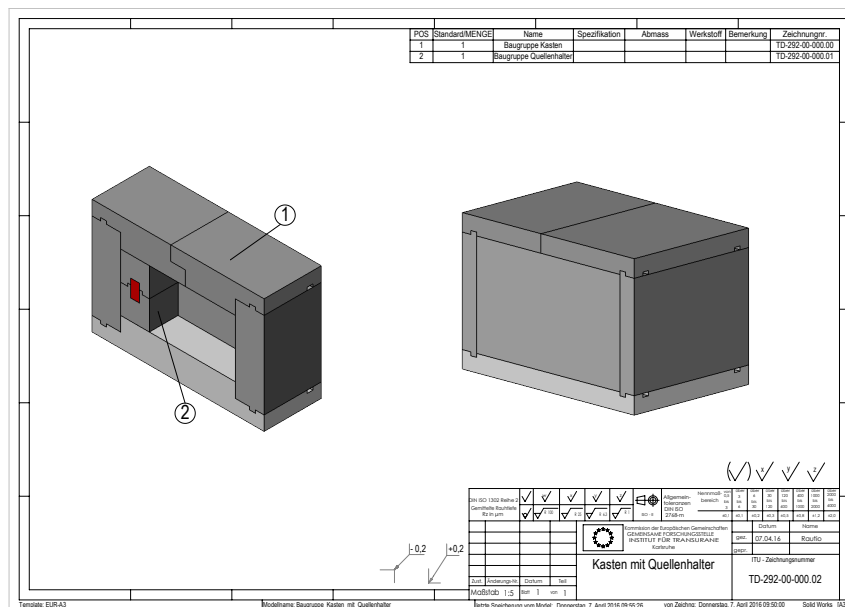


Abbildung A.4 – Skizze eines Schnittes durch den Polyethylenkasten und den Neutronenquellen-Halter. Mit den Außenmaßen und Wanddicken aus Abbildung A.3 ergeben sich die Innenmaße des Polyethylenkastens. In Kombination mit den Maßen des Neutronenquellen-Stahlzylinders ergeben sich die Maße des Neutronenquellen-Halters. Grafik erstellt von Jouni Rautio, JRC-KRU.



Abbildung A.5 – Photographie des offenen Polyethylenkastens (außen und unten) aus der Vogelperspektive mit Spaltmaterial auf Probenhalter (rechts), zusätzlichen 5 cm + 1 cm + 1 cm = 7 cm Polyethylen (mittig) und der Neutronenquelle in der Polyethylen-Halterung. Photographiert von Ludwig Holzleitner, JRC-KRU.

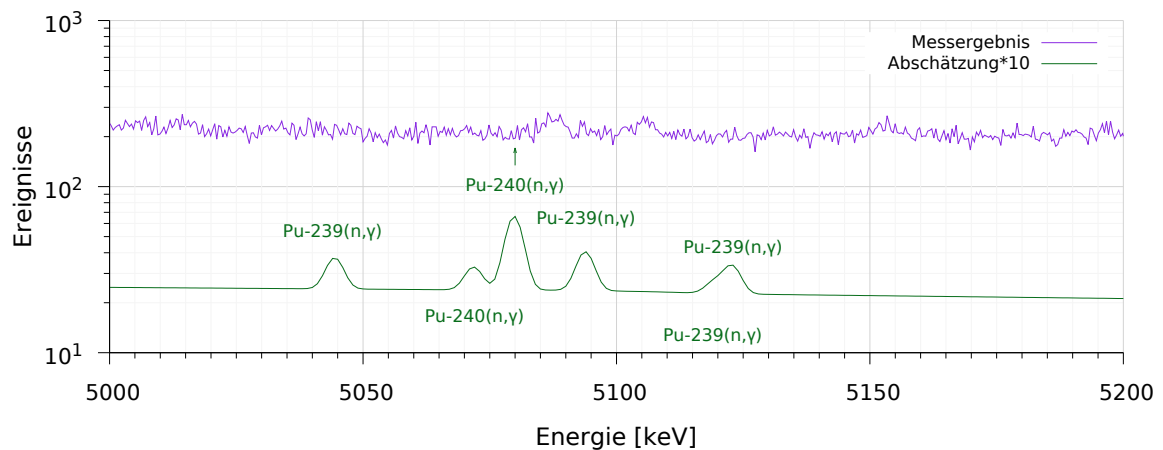


Abbildung A.6 – Gammaspektrum der mit Neutronen der Americium-241/Beryllium Neutronenquelle bestrahlten zwanzig Plutoniumproben, aufgenommen am 20.07.2016 ab 14¹¹ Uhr, die *Live time* beträgt 5367 Sekunden, der Totzeit-Anteil 17.9%. Zusätzlich zu der Messkurve (lila) ist das Ergebnis der analytischen Abschätzung (grün) dargestellt.

Anhang B

Ergänzungen zu den Abschätzungen

B.1 Weitere Ergebnisse der analytischen Abschätzungen

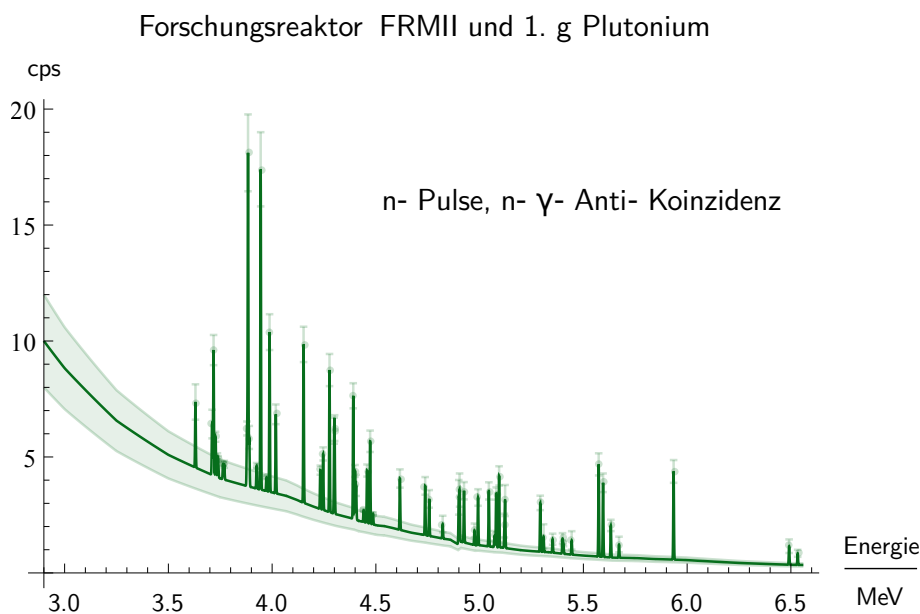


Abbildung B.1 – Analytisch abgeschätztes (n, γ) -Spektrum des WGPu-Targets (1 g Masse, 95 % Plutonium-239 Anteil), das mit thermischen Neutronen aus dem FRM-II Forschungsreaktor bestrahlt wird ($2.7 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ Neutronen am Ort des Targets), die durch einen zusätzlichen *Chopper* gepulst werden. Ereignisse werden im Detektor nur beim Auftreffen der Neutronenpulse auf das Target aufgezeichnet und außerdem nur in Anti-Koinzidenz zu Neutronen, also Spaltevents.

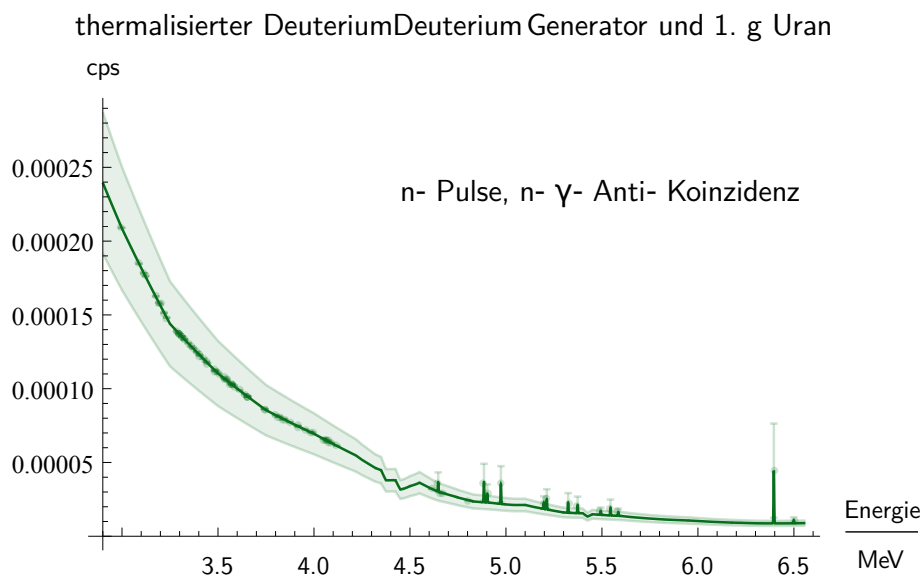
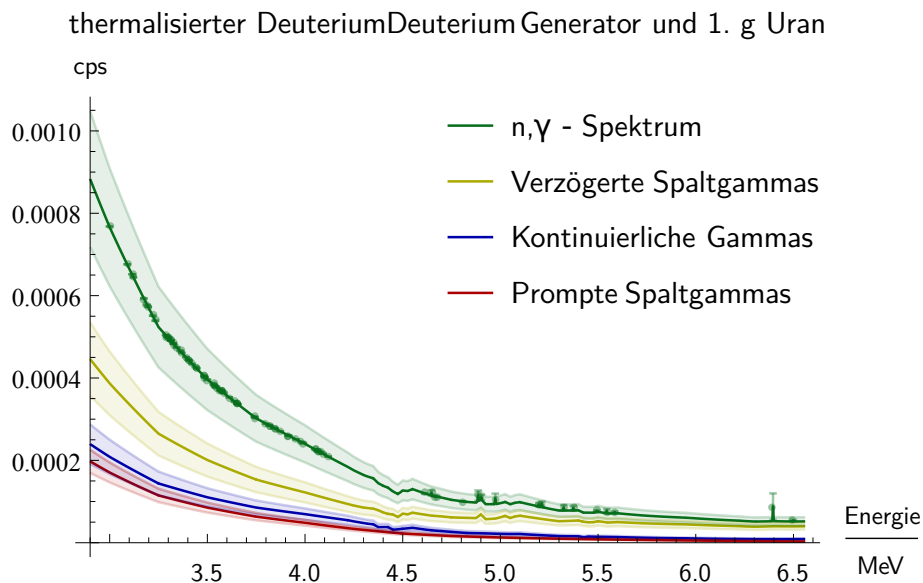


Abbildung B.2 – Analytisch abgeschätztes (n, γ)-Spektrum des HEU-Targets (1 g Masse, 90% Uran-235 Anreicherung), das mit ideal thermalisierten Neutronen aus dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator bestrahlt wird ($5.6 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ Neutronen am Ort des Targets). Oben das Gesamtspektrum mit einer Aufschlüsselung der einzelnen Beiträge; Unten mit gepulsten Neutronen und einer n- γ -Anti-Koinzidenz Elektronik. Die schattierten Bereiche geben die Unsicherheiten an.

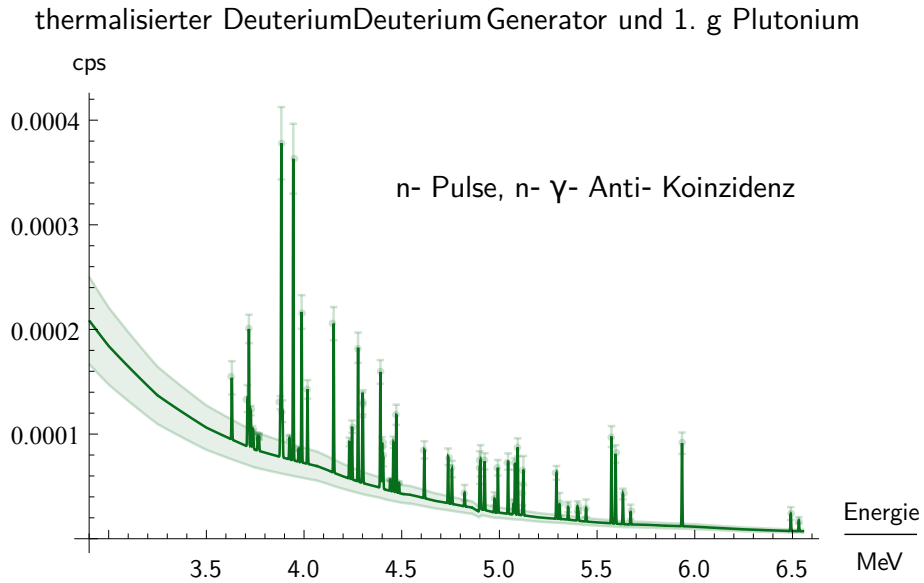


Abbildung B.3 – Analytisch abgeschätztes (n, γ) -Spektrum des WGPu-Targets (1 g Masse, 95 % Plutonium-239 Anteil), das gepulst mit ideal thermalisierten Neutronen aus dem Deuterium-Deuterium Neutronengenerator bestrahlt wird ($5.6 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ Neutronen am Ort des Targets). Ereignisse werden im Detektor nur beim Auftreffen der Neutronenpulse auf das Target aufgezeichnet und außerdem nur in Anti-Koinzidenz zu Neutronen, also Spaltevents.

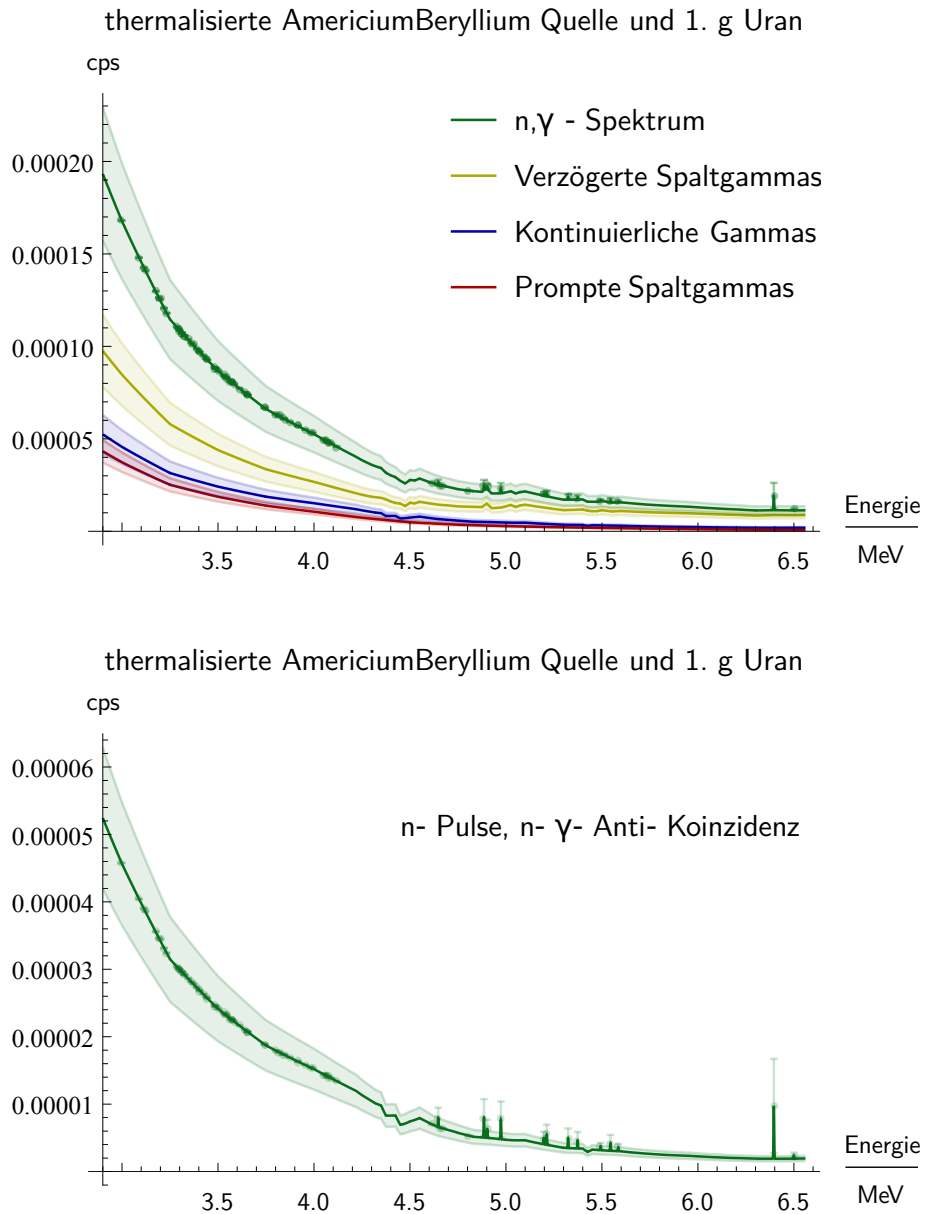


Abbildung B.4 – Analytisch abgeschätztes (n, γ) -Spektrum des HEU-Targets (1 g Masse, 90% Uran-235 Anreicherung), das mit ideal thermalisierten Neutronen aus der radioaktiven Americium-241/Beryllium Neutronenquelle bestrahlt wird ($1.24 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ Neutronen am Ort des Targets). Oben das Gesamtspektrum mit einer Aufschlüsselung der einzelnen Beiträge; Unten mit durch einen zusätzlichen *Chopper* gepulsten Neutronen und nur in Anti-Koinzidenz zu Neutronen, also Spaltevents. Die schattierten Bereiche geben die Unsicherheiten an.

B.2 Wechselwirkungsquerschnitte

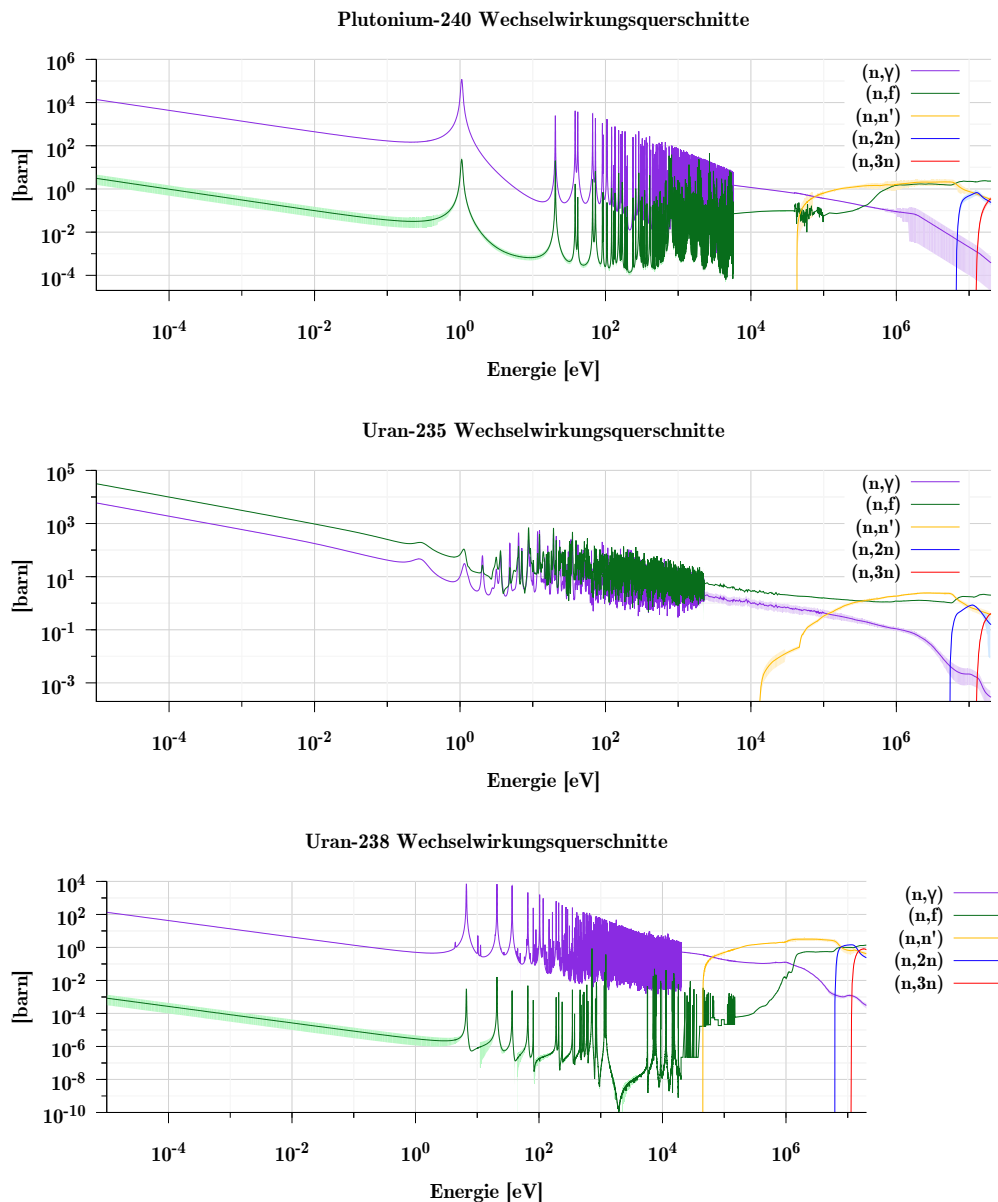


Abbildung B.5 – Wechselwirkungsquerschnitte für Reaktionen von Neutronen an Plutonium-240, Uran-235 und Uran-238. Der doppellogarithmische Plot beruht auf Daten der ENDF/B-VII.1 Bibliothek (*Evaluated Nuclear Data File*) [112], bezogen mit *Janis 4*, dem *Java-based Nuclear data Information System* der IAEA [113].

B.3 Hoch-energetische Gamma-Emissionen nach Neutroneneinfängen

E_γ keV	Δ_E keV	I_γ pro 10^3 Einfänge	Δ_I pro 10^3 Einfänge	$\Delta_{I,rel}$ %
4404.80	0.70	0.839156	0.247193	29.46
4615.80	0.30	1.332402	0.194621	14.61
4737.50	0.40	1.311103	0.194238	14.81
4757.10	0.60	0.991486	0.213047	21.49
4822.00	1.20	0.392567	0.221886	56.52
4899.40	0.90	1.199521	0.429680	35.82
4903.40	1.40	1.390906	0.412787	29.68
4924.80	0.30	1.436472	0.190924	13.29
4975.10	0.60	0.412413	0.187461	45.45
4992.40	0.30	1.344902	0.189423	14.08
5044.40	0.30	1.582770	0.185634	11.73
5093.83	0.20	2.062346	0.181084	8.78
5119.30	1.00	0.490171	0.255297	52.08
5122.80	0.70	1.320037	0.409314	31.01
5292.10	0.30	1.466566	0.157938	10.77
5308.20	1.90	0.466767	0.364306	78.05
5351.80	0.70	0.408359	0.163344	40.00
5399.50	0.80	0.455322	0.155768	34.21
5403.90	0.70	0.300287	0.072100	24.01
5443.70	1.60	0.442038	0.282413	63.89
5573.74	0.13	2.939133	0.184520	6.28
5594.88	0.16	2.372830	0.173297	7.30
5632.30	0.30	1.033583	0.149598	14.47
5671.80	1.30	0.430525	0.249983	58.06
5934.80	0.20	3.023056	0.238662	7.89
6491.50	0.90	0.707927	0.249857	35.29
6532.80	0.50	0.445648	0.127328	28.57

Tabelle B.1 – Für die analytischen Abschätzungen verwendeten Plutonium-239 Gamma-Intensitäten I_γ (pro Neutroneneinfang) in Abhängigkeit der Gamma-Energie E_γ (in keV) mit den jeweiligen absoluten Unsicherheiten Δ_I (in keV) und Δ_E (in keV), sowie der relativen Unsicherheit $\Delta_{I,rel}$ für die Gamma-Intensität. Daten übernommen aus, beziehungsweise berechnet mit Chrien *et al.* [86].

B.3. HOCH-ENERGETISCHE GAMMA-EMISSIONEN NACH
NEUTRONENEINFÄNGEN

E_γ keV	Δ_E keV	I_γ pro 10^3 Einfänge	Δ_I pro 10^3 Einfänge	$\Delta_{I,rel}$ %
3630.52	0.03	24.005190	6.010973	25.04
3710.63	0.20	19.006680	5.001925	26.32
3717.81	0.05	47.002450	3.078470	6.55
3727.57	0.10	14.892680	1.120178	7.52
3736.33	0.19	7.405200	0.805455	10.88
3740.22	0.21	6.397270	0.804638	12.58
3763.36	0.13	5.800740	0.496891	8.57
3769.46	0.12	5.800740	1.194392	20.59
3878.71	0.08	21.207670	1.434230	6.76
3883.89	0.04	130.002400	7.228590	5.56
3889.94	0.20	19.006680	4.015405	21.13
3925.30	0.10	9.009660	0.602928	6.69
3944.81	0.04	126.999180	7.223541	5.69
3972.68	0.05	5.409910	0.313001	5.79
3987.74	0.02	63.993270	3.127448	4.89
4017.80	0.06	31.904070	2.345017	7.35
4151.53	0.02	66.009130	3.131406	4.74
4232.04	0.05	16.497140	1.020613	6.19
4245.84	0.04	23.902340	1.438231	6.02
4276.61	0.02	60.990050	3.121770	5.12
4298.95	0.06	24.992550	3.013035	12.06
4301.25	0.05	27.008410	3.014679	11.16
4390.97	0.03	54.201950	0.843213	1.56
4399.54	0.10	21.207670	1.536083	7.24
4441.12	0.09	5.307060	0.312835	5.89
4457.42	0.03	23.408660	1.336009	5.71
4472.29	0.04	37.005430	3.045121	8.23
4486.19	0.19	4.792810	0.495874	10.35
5071.80	1.00	5.800740	2.407351	41.50
5079.80	0.02	27.604940	1.444485	5.23

Tabelle B.2 – Für die analytischen Abschätzungen verwendeten Plutonium-240 Gamma-Intensitäten I_γ (pro Neutroneneinfang) in Abhängigkeit der Gamma-Energie E_γ (in keV) mit den jeweiligen absoluten Unsicherheiten Δ_I (pro Neutroneneinfang) und Δ_E (in keV), sowie der relativen Unsicherheit $\Delta_{I,rel}$ für die Gamma-Intensität. Daten übernommen aus, beziehungsweise berechnet mit CapGam [105].

E_γ keV	Δ_E keV	I_γ pro 10^3 Einfänge	Δ_I pro 10^3 Einfänge	$\Delta_{I,rel}$ %
4647.10	0.60	0.400200	0.411860	102.91
4885.50	0.60	0.899000	0.810004	90.10
4902.70	1.90	0.400200	0.411860	102.91
4973.70	0.60	0.899000	0.810004	90.10
5197.20	0.40	0.301600	0.291716	96.72
5212.80	0.70	0.498800	0.462212	92.66
5323.80	0.50	0.498800	0.462212	92.66
5373.40	2.00	0.400200	0.411860	102.91
5493.20	1.40	0.197200	0.170780	86.60
5544.50	0.50	0.400200	0.411860	102.91
5585.00	0.80	0.197200	0.170780	86.60
6395.50	0.20	3.201600	2.836142	88.59
6499.50	0.50	0.197200	0.170780	86.60

Tabelle B.3 – Für die analytischen Abschätzungen verwendeten Uran-235 Gamma-Intensitäten I_γ (pro Neutroneneinfang) in Abhängigkeit der Gamma-Energie E_γ (in keV) mit den jeweiligen absoluten Unsicherheiten Δ_I (pro Neutroneneinfang) und Δ_E (in keV), sowie der relativen Unsicherheit $\Delta_{I,rel}$ für die Gamma-Intensität. Daten übernommen aus, beziehungsweise berechnet mit CapGam [105].

E_γ keV	Δ_E keV	I_γ pro 10^3 Einfänge	Δ_I pro 10^3 Einfänge	$\Delta_{I,rel}$ %
2998.60	0.70	1.067200	0.658203	61.68
3089.40	0.70	0.649600	0.403451	62.11
3114.10	0.70	0.690200	0.430167	62.32
3121.80	0.70	0.707600	0.437226	61.79
3175.20	0.70	0.614800	0.379109	61.66
3191.80	0.70	0.435000	0.262027	60.24
3197.20	0.70	1.450000	0.919660	63.42
3220.00	0.70	1.125200	0.692001	61.50
3233.20	0.70	0.887400	0.541040	60.97
3286.10	0.20	0.359600	0.183746	51.10
3293.50	1.50	0.017400	0.019500	111.88
3296.50	0.30	0.632200	0.324736	51.37
3301.90	0.30	0.145000	0.074800	51.59
3311.50	0.60	0.342200	0.195165	57.03
3312.80	0.60	0.359600	0.202887	56.42
3324.90	0.20	0.145000	0.074800	51.59
3326.90	0.50	0.017400	0.008730	50.17
3343.90	0.30	0.034800	0.017460	50.17
3360.60	0.20	0.145000	0.074800	51.59
3369.60	0.20	0.092800	0.049700	53.56
3389.50	0.60	0.017400	0.008730	50.17
3401.90	0.20	0.237800	0.124282	52.26

B.3. HOCH-ENERGETISCHE GAMMA-EMISSIONEN NACH
NEUTRONENEINFÄNGEN

E_γ keV	Δ_E keV	I_γ pro 10 ³ Einfänge	Δ_I pro 10 ³ Einfänge	$\Delta_{I,rel}$ %
3406.90	0.80	0.003790	0.003790	100.00
3422.90	0.40	0.017400	0.008730	50.17
3438.40	0.20	0.220400	0.111941	50.79
3445.40	0.20	0.417600	0.215925	51.71
3481.80	0.30	0.069600	0.039000	56.06
3485.90	0.70	0.069600	0.039000	56.06
3488.20	0.30	0.255200	0.132685	51.99
3500.80	0.30	0.069600	0.039000	56.06
3529.60	0.20	0.145000	0.074800	51.59
3535.80	0.50	0.052200	0.031400	60.24
3541.10	0.80	0.052200	0.031400	60.24
3546.10	0.30	0.092800	0.049700	53.56
3564.00	0.50	0.382800	0.199027	51.99
3568.70	0.70	0.034800	0.024600	70.83
3571.20	0.50	0.110200	0.058000	52.60
3574.40	0.70	0.069600	0.039000	56.06
3583.10	0.20	3.880200	2.002674	51.61
3611.90	0.20	1.339800	0.691549	51.62
3638.90	0.20	1.125200	0.578781	51.44
3651.60	0.30	0.632200	0.324736	51.37
3653.90	0.80	0.179800	0.096700	53.78
3656.90	0.50	0.127600	0.066300	51.99
3739.80	0.60	0.342200	0.175181	51.19
3744.00	0.20	0.017400	0.008730	50.17
3800.70	0.50	0.017400	0.008730	50.17
3815.90	0.50	0.145000	0.074800	51.59
3817.90	0.50	0.110200	0.058000	52.60
3840.80	0.40	0.179800	0.091900	51.10
3844.50	0.20	0.614800	0.316215	51.43
3873.90	0.20	0.237800	0.124282	52.26
3913.10	2.00	0.007580	0.003790	50.01
3918.20	1.00	0.017400	0.008730	50.17
3953.40	0.30	0.052200	0.026190	50.17
3982.80	0.20	2.389600	1.229520	51.45
3991.40	0.20	2.209800	1.137702	51.48
4049.70	0.50	0.034800	0.017460	50.17
4060.36	0.15	13.229800	6.794240	51.36
4067.20	0.20	0.672800	0.344661	51.23
4071.70	0.70	0.017400	0.008730	50.17
4080.40	0.20	0.110200	0.058000	52.60
4090.70	0.20	0.127600	0.066300	51.99
4118.70	0.20	0.145000	0.074800	51.59
4612.50	0.20	0.290000	0.149604	51.59
4660.70	0.20	0.307400	0.158107	51.43

E_γ keV	Δ_E keV	I_γ pro 10^3 Einfänge	Δ_I pro 10^3 Einfänge	$\Delta_{I,rel}$ %
4672.60	0.20	0.110200	0.058000	52.60
4806.40	1.50	0.017400	0.008730	50.17

Tabelle B.4 – Für die analytischen Abschätzungen verwendeten Uran-238 Gamma-Intensitäten I_γ (pro Neutroneneinfang) in Abhängigkeit der Gamma-Energie E_γ (in keV) mit den jeweiligen absoluten Unsicherheiten Δ_I (pro Neutroneneinfang) und Δ_E (in keV), sowie der relativen Unsicherheit $\Delta_{I,rel}$ für die Gamma-Intensität. Daten übernommen aus, beziehungsweise berechnet mit CapGam [105].

B.4 Monte Carlo N-Particle code Ausgabe

Es folgt die Ausgabe des *Monte Carlo N-Particle code*. Die Ausgabe beginnt mit der eingegebenen Problemstellung auf den ersten beiden Seiten. Danach folgen die Analysen und Ergebnisse, der Differenzfaktor für die Thermalisierung findet sich auf Seite 15 der Ausgabe.

lmcnpx version 2.6.0 ld=Wed Apr 09 08:00:00 MST 2008

>>PoliMi v1.5.0<<

probid = 09/19/14 11:50:21
i=fred.inp
o=fred.out

* * *

MCNPX

* Copyright 2007. Los Alamos National Security, LLC. *
* All rights reserved. *
* * *

* This material was produced under U.S. Government contract *
* DE-AC52-06NA25396 for Los Alamos National Laboratory, *
* which is operated by Los Alamos National Security, LLC *
* for the U.S. Department of Energy. The Government is *
* granted for itself and others acting on its behalf a *
* paid-up, nonexclusive, irrevocable worldwide license in *
* this material to reproduce, prepare derivative works, and *
* works, and perform publicly and display publicly. *
* Beginning five (5) years after June 1, 2006, subject to *
* additional five-year worldwide renewals, the Government *
* is granted for itself and others acting on its behalf *
* a paid-up, nonexclusive, irrevocable worldwide license *
* in this material to reproduce, prepare derivative works, *
* distribute copies to the public, perform publicly and *
* display publicly, and to permit others to do so. *
* * *

* NEITHER THE UNITED STATES NOR THE UNITED STATES *
* DEPARTMENT OF ENERGY, NOR LOS ALAMOS NATIONAL SECURITY, *
* LLC, NOR ANY OF THEIR EMPLOYEES, MAKES ANY WARRANTY, *
* EXPRESS OR IMPLIED, OR ASSUMES ANY LEGAL LIABILITY OR *
* RESPONSIBILITY FOR THE ACCURACY, COMPLETENESS, OR *
* USEFULNESS OF ANY INFORMATION, APPARATUS, PRODUCT, OR *
* PROCESS DISCLOSED, OR REPRESENTS THAT ITS USE WOULD NOT *
* INFRINGE PRIVATELY OWNED RIGHTS. *
* * *

- 1- problem
- 2- c
- 3- 1 1 -0.955 1 -2 3 -4 5 -6 imp:n=1
- 4- 2 0 -7 imp:n=1
- 5- 98 0 -99 #1 #2 imp:n=1
- 6- 99 0 99 imp:n=0
- 7-
- 8- 1 PX 10
- 9- 2 PX 15
- 10- 3 PY -10
- 11- 4 PY 10
- 12- 5 PZ -10
- 13- 6 PZ 10
- 14- 7 SX 22 2
- 15- 99 SO 40
- 16-
- 17- M1 6000.60c 0.333 1001.60c 0.667 \$ polyethylene

```

18-      MT1 poly.01t
19-      Fl:n 1
20-      C1 0 1
21-      E1 1E-9 100ilog 10
22-      F11:n 7
23-      C11 0 1
24-      E11 1E-9 100ilog 10
25-      SDEF ERG=2.5 POS=0 0 0 VEC=1 0 0 DIR=1
26-      mode n
27-      nps 1e8

```

warning. total nu is now the default for fixed-source problems.

1LAHET physics

options:

print table 41

```

lca      ielas      ipreq      iexisa      ichoic      jcoult      nexite      npidk      noact      icem      ilaq
lca              2          1          1          23          1          1          0          1          0          0

lcb      flenb(i),i=1,6
flim0
lcb      3.4900E+03  3.4900E+03  2.4900E+03  2.4900E+03  8.0000E+02  8.0000E+02 -1.0000E+00
-1.0000E+00

lea      ipht          icc      nobalc      nobale      ifbrk      ilvden      ievap      nofis
lea              1          4          1          0          1          0          0          1

leb      yzere          bzere          yzero          bzero
leb      1.5000E+00  8.0000E+00  1.5000E+00  1.0000E+01

```

1cells

print table 60

```

          atom          gram
          neutron
cell mat  density      density      volume      mass      pieces
importance
1      1      1s 1.23099E-01  9.55000E-01  2.00000E+03  1.91000E+03      0
1.0000E+00
2      2      0  0.00000E+00  0.00000E+00  3.35103E+01  0.00000E+00      1
1.0000E+00
3      98     0  0.00000E+00  0.00000E+00  0.00000E+00  0.00000E+00      0
1.0000E+00
4      99     0  0.00000E+00  0.00000E+00  0.00000E+00  0.00000E+00      0
0.0000E+00

total              2.03351E+03  1.91000E+03

```

random number control 0.830206021468160E+14

minimum source weight = 1.0000E+00 maximum source weight = 1.0000E+00

1 warning message so far.

lcross-section
 tables
 print table 100

table	length			
		tables from file endf60		
1001.60c	2145	1-h-1 from		
endf-vi.1			mat 125	11/25/93
6000.60c	19763	6-c-nat from		
endf-vi.1			mat 600	11/25/93

tables from file
 tmccs

poly.01t	11544	hydrogen in polyethylene at 300 degrees kelvin		
1001	0	010/22/85		
total	33452			

lparticles and energy
 limits
 table 101

print

	particle	maximum	smallest	largest	
	always	always			
	cutoff	particle	table	table	use
	table	use model			
particle type	energy	energy	maximum	maximum	
below	above				
1 n neutron	0.0000E+00	1.0000E+37	3.2000E+01	1.0000E+02	
3.2000E+01	1.0000E+02				

decimal words of dynamically allocated storage

general	0		
tallies	9054		
bank	116737		
cross sections	33453		
total	0	=	0 bytes

 dump no. 1 on file runtpi nps = 0 coll = 0 ctm =
 0.00 nrn = 0

```

1 warning message so far.
|===== PoliMi warning: =====|
|      IPOL(1,2,3) values are zero      |
| (no PoliMi source, fission, photons) |
|== and also IPOL(7) value is zero! ==|
|==(no energy released output file) ==|
|==== and RPOL(1,2,3) values too! ====|
|==== (no thresholds on energy)  ====|
|=====|

```

```

*****
*****

```

```

dump no.    2 on file runtpi    nps =    24992137    coll =    525920060    ctm =
15.01      nrn =    5159235569

```

```

*****
*****

```

```

dump no.    3 on file runtpi    nps =    49956263    coll =    1051773654    ctm =
30.02      nrn =    10317136318

```

```

*****
*****

```

```

dump no.    4 on file runtpi    nps =    74948440    coll =    1577615661    ctm =
45.03      nrn =    15475733631

```

```

*****
*****

```

```

dump no.    5 on file runtpi    nps =    99912643    coll =    2103355903    ctm =
60.04      nrn =    20632875254

```

1problem
summary

run terminated when 100000000 particle histories were done.

```

+
    09/19/14 12:50:27
problem
probid =    09/19/14 11:50:21

```

neutron creation	tracks	weight	energy	neutron loss
tracks	weight	energy		
(per source particle)				(per
source particle)				
source	100000000	1.0000E+00	2.5000E+00	escape
98900072	9.4038E-01	1.1743E+00		
nucl. interaction	0	0.	0.	energy cutoff
0	0.	0.		

particle decay	0	0.	0.	time cutoff
0 0.	0.			
weight window	0	0.	0.	weight window
0 0.	0.			
cell importance	0	0.	0.	cell importance
0 0.	0.			
weight cutoff	0	2.7379E-03	1.0196E-10	weight cutoff
1099928 2.7410E-03	1.0199E-10			
energy importance	0	0.	0.	energy importance
0 0.	0.			
dxtran	0	0.	0.	dxtran
0 0.	0.			
forced collisions	0	0.	0.	forced collisions
0 0.	0.			
exp. transform	0	0.	0.	exp. transform
0 0.	0.			
upscattering	0	0.	5.9907E-08	downscattering
0 0.	1.3257E+00			
photonuclear	0	0.	0.	capture
0 5.9616E-02	3.3068E-05			
(n,xn)	0	0.	0.	loss to (n,xn)
0 0.	0.			
prompt fission	0	0.	0.	loss to fission
0 0.	0.			
delayed fission	0	0.	0.	nucl. interaction
0 0.	0.			
				particle decay
				0 0.
				0.
tabular boundary	0	0.	0.	tabular boundary
0 0.	0.			
tabular sampling	0	0.		
0.				
total	100000000	1.0027E+00	2.5000E+00	total
100000000	1.0027E+00	2.5000E+00		
number of neutrons banked			0	average time of
(shakes)	cutoffs			
neutron tracks per source particle		1.0000E+00		escape
2.1368E+03	tco	1.0000E+34		
neutron collisions per source particle		2.1052E+01		capture
6.4255E+03	eco	0.0000E+00		
total neutron collisions		2105211924		capture or escape
2.3925E+03	wc1	-5.0000E-01		
net multiplication		1.0000E+00	0.0000	any termination
2.4539E+03	wc2	-2.5000E-01		
computer time so far in this run	60.09 minutes			maximum number ever in
bank	0			
computer time in mcrun	60.09 minutes			bank overflows to backup
file	0			
source particles per minute	1.6641E+06			dynamic storage
words,	0 bytes.			0
random numbers generated	20651069003			most random numbers used
was	10330 in history 51165478			

range of sampled source weights = 1.0000E+00 to 1.0000E+00
 1neutron activity in each

cell

print table 126

	tracks flux	population average	collisions average	collisions * weight (per history) (relative)	number weighted energy (cm)	weighted energy
1	100000000	100000000	2105211924	1.5633E+01	5.3352E-04	1.0297E+00
	8.8457E-01	1.8272E+00				
2	28288363	28288363	0	0.0000E+00	4.4199E-02	2.4231E+00
	9.9711E-01	0.0000E+00				
3	98	227188435	100000000	0	0.0000E+00	1.9610E-03
	9.5542E-01	0.0000E+00				

total	355476798	228288363	2105211924	1.5633E+01		
-------	-----------	-----------	------------	------------	--	--

tally 1 nps =100000000

tally type 1 number of particles crossing a surface.

particle(s): neutron

surface

1

cosine bin: -1. to

0.00000E+00

energy

1.0000E-09	2.13602E-05	0.0183
1.2561E-09	1.22808E-05	0.0238
1.5777E-09	1.90742E-05	0.0192
1.9817E-09	2.41317E-05	0.0172
2.4891E-09	3.40039E-05	0.0144
3.1264E-09	6.80049E-05	0.0102
3.9270E-09	1.06438E-04	0.0081
4.9325E-09	1.49434E-04	0.0069
6.1955E-09	1.98342E-04	0.0060
7.7820E-09	3.62529E-04	0.0044
9.7746E-09	5.26237E-04	0.0037
1.2277E-08	8.02845E-04	0.0030
1.5421E-08	1.19525E-03	0.0024
1.9370E-08	1.73537E-03	0.0020
2.4330E-08	2.45191E-03	0.0017
3.0560E-08	3.25347E-03	0.0015
3.8385E-08	4.13601E-03	0.0013
4.8213E-08	4.99081E-03	0.0012
6.0559E-08	5.53594E-03	0.0011
7.6066E-08	5.75832E-03	0.0011
9.5543E-08	5.23552E-03	0.0012
1.2001E-07	4.38474E-03	0.0013
1.5074E-07	3.14903E-03	0.0016
1.8933E-07	2.14813E-03	0.0020
2.3781E-07	1.56535E-03	0.0024
2.9871E-07	1.25269E-03	0.0028
3.7520E-07	1.19015E-03	0.0029
4.7127E-07	1.16007E-03	0.0029
5.9194E-07	1.12829E-03	0.0030
7.4351E-07	1.13007E-03	0.0030

9.3389E-07	1.11473E-03	0.0030
1.1730E-06	1.10452E-03	0.0030
1.4734E-06	1.11167E-03	0.0030
1.8507E-06	1.10871E-03	0.0030
2.3245E-06	1.10939E-03	0.0030
2.9198E-06	1.12081E-03	0.0030
3.6674E-06	1.12520E-03	0.0030
4.6064E-06	1.12726E-03	0.0030
5.7860E-06	1.12521E-03	0.0030
7.2675E-06	1.13848E-03	0.0030
9.1284E-06	1.15522E-03	0.0029
1.1466E-05	1.16486E-03	0.0029
1.4402E-05	1.18327E-03	0.0029
1.8089E-05	1.19290E-03	0.0029
2.2721E-05	1.20486E-03	0.0029
2.8539E-05	1.22741E-03	0.0029
3.5847E-05	1.23277E-03	0.0028
4.5026E-05	1.24784E-03	0.0028
5.6556E-05	1.26518E-03	0.0028
7.1037E-05	1.28311E-03	0.0028
8.9227E-05	1.29848E-03	0.0028
1.1207E-04	1.30938E-03	0.0028
1.4077E-04	1.32895E-03	0.0027
1.7682E-04	1.34174E-03	0.0027
2.2209E-04	1.36179E-03	0.0027
2.7896E-04	1.38896E-03	0.0027
3.5039E-04	1.40906E-03	0.0027
4.4011E-04	1.41446E-03	0.0027
5.5281E-04	1.43885E-03	0.0026
6.9436E-04	1.45334E-03	0.0026
8.7216E-04	1.46773E-03	0.0026
1.0955E-03	1.48784E-03	0.0026
1.3760E-03	1.51005E-03	0.0026
1.7283E-03	1.54047E-03	0.0025
2.1709E-03	1.55033E-03	0.0025
2.7267E-03	1.57997E-03	0.0025
3.4249E-03	1.59937E-03	0.0025
4.3019E-03	1.61855E-03	0.0025
5.4035E-03	1.64252E-03	0.0025
6.7871E-03	1.67214E-03	0.0024
8.5250E-03	1.69705E-03	0.0024
1.0708E-02	1.72702E-03	0.0024
1.3450E-02	1.76182E-03	0.0024
1.6894E-02	1.81397E-03	0.0023
2.1219E-02	1.84942E-03	0.0023
2.6653E-02	1.87946E-03	0.0023
3.3477E-02	1.94221E-03	0.0023
4.2050E-02	2.00848E-03	0.0022
5.2817E-02	2.07431E-03	0.0022
6.6341E-02	2.14773E-03	0.0022
8.3328E-02	2.24817E-03	0.0021
1.0467E-01	2.34577E-03	0.0021
1.3147E-01	2.47231E-03	0.0020
1.6513E-01	2.59625E-03	0.0020
2.0741E-01	2.74448E-03	0.0019
2.6052E-01	2.89544E-03	0.0019
3.2723E-01	3.08777E-03	0.0018

4.1102E-01	3.29024E-03	0.0017
5.1626E-01	3.54250E-03	0.0017
6.4846E-01	3.86960E-03	0.0016
8.1450E-01	4.23148E-03	0.0015
1.0231E+00	4.68548E-03	0.0015
1.2850E+00	5.24304E-03	0.0014
1.6141E+00	6.62521E-03	0.0012
2.0274E+00	4.13267E-02	0.0005
2.5465E+00	1.99162E-03	0.0022
3.1985E+00	0.00000E+00	0.0000
4.0175E+00	0.00000E+00	0.0000
5.0463E+00	0.00000E+00	0.0000
6.3384E+00	0.00000E+00	0.0000
7.9614E+00	0.00000E+00	0.0000
1.0000E+01	0.00000E+00	0.0000
total	2.18581E-01	0.0002

surface

1

cosine bin: 0.00000E+00 to
1.00000E+00

energy

1.0000E-09	0.00000E+00	0.0000
1.2561E-09	0.00000E+00	0.0000
1.5777E-09	0.00000E+00	0.0000
1.9817E-09	0.00000E+00	0.0000
2.4891E-09	0.00000E+00	0.0000
3.1264E-09	0.00000E+00	0.0000
3.9270E-09	0.00000E+00	0.0000
4.9325E-09	0.00000E+00	0.0000
6.1955E-09	0.00000E+00	0.0000
7.7820E-09	0.00000E+00	0.0000
9.7746E-09	0.00000E+00	0.0000
1.2277E-08	0.00000E+00	0.0000
1.5421E-08	0.00000E+00	0.0000
1.9370E-08	0.00000E+00	0.0000
2.4330E-08	0.00000E+00	0.0000
3.0560E-08	0.00000E+00	0.0000
3.8385E-08	0.00000E+00	0.0000
4.8213E-08	0.00000E+00	0.0000
6.0559E-08	0.00000E+00	0.0000
7.6066E-08	0.00000E+00	0.0000
9.5543E-08	0.00000E+00	0.0000
1.2001E-07	0.00000E+00	0.0000
1.5074E-07	0.00000E+00	0.0000
1.8933E-07	0.00000E+00	0.0000
2.3781E-07	0.00000E+00	0.0000
2.9871E-07	0.00000E+00	0.0000
3.7520E-07	0.00000E+00	0.0000
4.7127E-07	0.00000E+00	0.0000
5.9194E-07	0.00000E+00	0.0000
7.4351E-07	0.00000E+00	0.0000
9.3389E-07	0.00000E+00	0.0000
1.1730E-06	0.00000E+00	0.0000
1.4734E-06	0.00000E+00	0.0000
1.8507E-06	0.00000E+00	0.0000

2.3245E-06	0.00000E+00	0.0000
2.9198E-06	0.00000E+00	0.0000
3.6674E-06	0.00000E+00	0.0000
4.6064E-06	0.00000E+00	0.0000
5.7860E-06	0.00000E+00	0.0000
7.2675E-06	0.00000E+00	0.0000
9.1284E-06	0.00000E+00	0.0000
1.1466E-05	0.00000E+00	0.0000
1.4402E-05	0.00000E+00	0.0000
1.8089E-05	0.00000E+00	0.0000
2.2721E-05	0.00000E+00	0.0000
2.8539E-05	0.00000E+00	0.0000
3.5847E-05	0.00000E+00	0.0000
4.5026E-05	0.00000E+00	0.0000
5.6556E-05	0.00000E+00	0.0000
7.1037E-05	0.00000E+00	0.0000
8.9227E-05	0.00000E+00	0.0000
1.1207E-04	0.00000E+00	0.0000
1.4077E-04	0.00000E+00	0.0000
1.7682E-04	0.00000E+00	0.0000
2.2209E-04	0.00000E+00	0.0000
2.7896E-04	0.00000E+00	0.0000
3.5039E-04	0.00000E+00	0.0000
4.4011E-04	0.00000E+00	0.0000
5.5281E-04	0.00000E+00	0.0000
6.9436E-04	0.00000E+00	0.0000
8.7216E-04	0.00000E+00	0.0000
1.0955E-03	0.00000E+00	0.0000
1.3760E-03	0.00000E+00	0.0000
1.7283E-03	0.00000E+00	0.0000
2.1709E-03	0.00000E+00	0.0000
2.7267E-03	0.00000E+00	0.0000
3.4249E-03	0.00000E+00	0.0000
4.3019E-03	0.00000E+00	0.0000
5.4035E-03	0.00000E+00	0.0000
6.7871E-03	0.00000E+00	0.0000
8.5250E-03	0.00000E+00	0.0000
1.0708E-02	0.00000E+00	0.0000
1.3450E-02	0.00000E+00	0.0000
1.6894E-02	0.00000E+00	0.0000
2.1219E-02	0.00000E+00	0.0000
2.6653E-02	0.00000E+00	0.0000
3.3477E-02	0.00000E+00	0.0000
4.2050E-02	0.00000E+00	0.0000
5.2817E-02	0.00000E+00	0.0000
6.6341E-02	0.00000E+00	0.0000
8.3328E-02	0.00000E+00	0.0000
1.0467E-01	0.00000E+00	0.0000
1.3147E-01	0.00000E+00	0.0000
1.6513E-01	0.00000E+00	0.0000
2.0741E-01	0.00000E+00	0.0000
2.6052E-01	0.00000E+00	0.0000
3.2723E-01	0.00000E+00	0.0000
4.1102E-01	0.00000E+00	0.0000
5.1626E-01	0.00000E+00	0.0000
6.4846E-01	0.00000E+00	0.0000
8.1450E-01	0.00000E+00	0.0000

```

1.0231E+00  0.00000E+00  0.0000
1.2850E+00  0.00000E+00  0.0000
1.6141E+00  0.00000E+00  0.0000
2.0274E+00  0.00000E+00  0.0000
2.5465E+00  1.00000E+00  0.0000
3.1985E+00  0.00000E+00  0.0000
4.0175E+00  0.00000E+00  0.0000
5.0463E+00  0.00000E+00  0.0000
6.3384E+00  0.00000E+00  0.0000
7.9614E+00  0.00000E+00  0.0000
1.0000E+01  0.00000E+00  0.0000
total      1.00000E+00  0.0000

```

1analysis of the results in the tally fluctuation chart bin (tfc) for tally 1 with nps = 100000000 print table 160

```

normed average tally per history = 1.00000E+00      unnormed average tally per
history = 1.00000E+00                               estimated variance of the
estimated tally relative error = 0.0000            relative error from nonzero
variance = 0.0000                                   scores = 0.0000
relative error from zero tallies = 0.0000          efficiency for the nonzero
scores = 0.0000                                     tallies = 1.0000
number of nonzero history tallies = 100000000      largest unnormalized history
tallies = 1.0000                                    tally = 1.00000E+00
history number of largest tally = 1                (largest tally)/(average tally) = 1.00000E+00
tally = 1.00000E+00                                (largest tally)/(avg nonzero
(largest tally)/(average tally) = 1.00000E+00     tally)= 1.00000E+00
(center confidence interval shift)/mean = 0.0000   shifted confidence interval
center = 1.00000E+00

```

if the largest history score sampled so far were to occur on the next history, the tfc bin quantities would change as follows:

estimated quantities	value at nps	value at nps+1
value (nps+1)/value (nps) -1.		
mean	1.00000E+00	
1.00000E+00	0.000000	
relative error	0.00000E+00	
0.00000E+00	0.000000	
variance of the variance	0.00000E+00	
0.00000E+00	0.000000	
shifted center	1.00000E+00	
1.00000E+00	0.000000	
figure of merit	1.00000E+30	
1.00000E+30	0.000000	

the 100 largest history tallies appear to have a maximum value of about 1.00000E+00 the large score tail of the empirical history score probability density function appears to have no unsampled regions.

=====

results of 10 statistical checks for the estimated answer for the tally
fluctuation chart (tfc) bin of tally 1

tfc bin	--mean--	-----relative error-----	----variance of the		
variance----	--figure of merit--	-pdf-	value	decrease	decrease
behavior	behavior	value	decrease	rate	value
rate	value	behavior	slope		decrease
desired	random	<0.10	yes	1/sqrt(nps)	<0.10
1/nps	constant	random	>3.00		yes
observed	constant	0.00	yes	yes	0.00
yes	constant	random	10.00		yes
passed?	yes	yes	yes	yes	yes
yes	yes	yes	yes		yes

=====

this tally meets the statistical criteria used to form confidence intervals: check the tally fluctuation chart to verify.
the results in other bins associated with this tally may not meet these statistical criteria.

estimated asymmetric confidence interval(1,2,3 sigma): 1.0000E+00 to 1.0000E+00; 1.0000E+00 to 1.0000E+00; 1.0000E+00 to 1.0000E+00
estimated symmetric confidence interval(1,2,3 sigma): 1.0000E+00 to 1.0000E+00; 1.0000E+00 to 1.0000E+00; 1.0000E+00 to 1.0000E+00

$$fom = (\text{histories/minute}) * (\text{f(x) signal-to-noise ratio}) ** 2 = (1.664E+06) * (7.752E+11) ** 2 = (1.664E+06) * (6.009E+23) = 1.000E+30$$

1tally 11 nps =100000000
tally type 1 number of particles crossing a surface.
particle(s): neutron

surface
7

cosine bin: -1. to
0.00000E+00
energy

1.0000E-09	1.33415E-06	0.0728
1.2561E-09	8.26799E-07	0.0921
1.5777E-09	9.75483E-07	0.0847
1.9817E-09	1.37141E-06	0.0720
2.4891E-09	1.85409E-06	0.0627
3.1264E-09	3.66096E-06	0.0442
3.9270E-09	6.27514E-06	0.0338
4.9325E-09	8.58927E-06	0.0290
6.1955E-09	1.11883E-05	0.0254
7.7820E-09	2.09188E-05	0.0185
9.7746E-09	2.97253E-05	0.0156

1.2277E-08	4.52825E-05	0.0126
1.5421E-08	6.64970E-05	0.0104
1.9370E-08	9.78977E-05	0.0086
2.4330E-08	1.37534E-04	0.0073
3.0560E-08	1.84623E-04	0.0063
3.8385E-08	2.29395E-04	0.0056
4.8213E-08	2.78153E-04	0.0051
6.0559E-08	3.05671E-04	0.0049
7.6066E-08	3.16894E-04	0.0049
9.5543E-08	2.89588E-04	0.0052
1.2001E-07	2.42848E-04	0.0057
1.5074E-07	1.72939E-04	0.0070
1.8933E-07	1.19916E-04	0.0086
2.3781E-07	8.71517E-05	0.0104
2.9871E-07	6.91909E-05	0.0119
3.7520E-07	6.43626E-05	0.0124
4.7127E-07	6.24989E-05	0.0126
5.9194E-07	6.21484E-05	0.0126
7.4351E-07	6.11979E-05	0.0127
9.3389E-07	6.07195E-05	0.0128
1.1730E-06	6.03086E-05	0.0128
1.4734E-06	6.04767E-05	0.0128
1.8507E-06	6.01720E-05	0.0129
2.3245E-06	6.08052E-05	0.0128
2.9198E-06	6.14087E-05	0.0127
3.6674E-06	6.15812E-05	0.0127
4.6064E-06	6.21881E-05	0.0127
5.7860E-06	6.36648E-05	0.0125
7.2675E-06	6.52137E-05	0.0124
9.1284E-06	6.69355E-05	0.0122
1.1466E-05	6.46500E-05	0.0124
1.4402E-05	6.73475E-05	0.0122
1.8089E-05	6.74484E-05	0.0122
2.2721E-05	6.91061E-05	0.0120
2.8539E-05	7.00918E-05	0.0119
3.5847E-05	7.05691E-05	0.0119
4.5026E-05	7.15846E-05	0.0118
5.6556E-05	7.24099E-05	0.0117
7.1037E-05	7.52736E-05	0.0115
8.9227E-05	7.58080E-05	0.0115
1.1207E-04	7.77814E-05	0.0113
1.4077E-04	7.96248E-05	0.0112
1.7682E-04	8.02382E-05	0.0112
2.2209E-04	8.18208E-05	0.0111
2.7896E-04	8.37632E-05	0.0109
3.5039E-04	8.42256E-05	0.0109
4.4011E-04	8.70775E-05	0.0107
5.5281E-04	8.85395E-05	0.0106
6.9436E-04	9.00312E-05	0.0105
8.7216E-04	9.07929E-05	0.0105
1.0955E-03	9.37442E-05	0.0103
1.3760E-03	9.52554E-05	0.0102
1.7283E-03	9.75467E-05	0.0101
2.1709E-03	9.82177E-05	0.0101
2.7267E-03	1.01978E-04	0.0099
3.4249E-03	1.05059E-04	0.0098
4.3019E-03	1.07860E-04	0.0096

5.4035E-03	1.10441E-04	0.0095
6.7871E-03	1.13571E-04	0.0094
8.5250E-03	1.17292E-04	0.0092
1.0708E-02	1.17662E-04	0.0092
1.3450E-02	1.24223E-04	0.0090
1.6894E-02	1.26593E-04	0.0089
2.1219E-02	1.35393E-04	0.0086
2.6653E-02	1.41723E-04	0.0084
3.3477E-02	1.47594E-04	0.0082
4.2050E-02	1.61153E-04	0.0079
5.2817E-02	1.67113E-04	0.0077
6.6341E-02	1.81143E-04	0.0074
8.3328E-02	1.92533E-04	0.0072
1.0467E-01	2.13963E-04	0.0068
1.3147E-01	2.31763E-04	0.0066
1.6513E-01	2.53322E-04	0.0063
2.0741E-01	2.87781E-04	0.0059
2.6052E-01	3.20271E-04	0.0056
3.2723E-01	3.52620E-04	0.0053
4.1102E-01	3.98019E-04	0.0050
5.1626E-01	4.47528E-04	0.0047
6.4846E-01	5.09897E-04	0.0044
8.1450E-01	5.75285E-04	0.0042
1.0231E+00	6.48613E-04	0.0039
1.2850E+00	7.33712E-04	0.0037
1.6141E+00	8.45219E-04	0.0034
2.0274E+00	9.38227E-04	0.0033
2.5465E+00	2.67196E-01	0.0002
3.1985E+00	0.00000E+00	0.0000
4.0175E+00	0.00000E+00	0.0000
5.0463E+00	0.00000E+00	0.0000
6.3384E+00	0.00000E+00	0.0000
7.9614E+00	0.00000E+00	0.0000
1.0000E+01	0.00000E+00	0.0000
total	2.81700E-01	0.0002

surface

7

cosine bin: 0.00000E+00 to
1.00000E+00

energy

1.0000E-09	1.33415E-06	0.0728
1.2561E-09	8.26799E-07	0.0921
1.5777E-09	9.75483E-07	0.0847
1.9817E-09	1.37141E-06	0.0720
2.4891E-09	1.85409E-06	0.0627
3.1264E-09	3.66096E-06	0.0442
3.9270E-09	6.27514E-06	0.0338
4.9325E-09	8.58927E-06	0.0290
6.1955E-09	1.11883E-05	0.0254
7.7820E-09	2.09188E-05	0.0185
9.7746E-09	2.97253E-05	0.0156
1.2277E-08	4.52825E-05	0.0126
1.5421E-08	6.64970E-05	0.0104
1.9370E-08	9.78977E-05	0.0086
2.4330E-08	1.37534E-04	0.0073

3.0560E-08	1.84623E-04	0.0063
3.8385E-08	2.29395E-04	0.0056
4.8213E-08	2.78153E-04	0.0051
6.0559E-08	3.05671E-04	0.0049
7.6066E-08	3.16894E-04	0.0049
9.5543E-08	2.89588E-04	0.0052
1.2001E-07	2.42848E-04	0.0057
1.5074E-07	1.72939E-04	0.0070
1.8933E-07	1.19916E-04	0.0086
2.3781E-07	8.71517E-05	0.0104
2.9871E-07	6.91909E-05	0.0119
3.7520E-07	6.43626E-05	0.0124
4.7127E-07	6.24989E-05	0.0126
5.9194E-07	6.21484E-05	0.0126
7.4351E-07	6.11979E-05	0.0127
9.3389E-07	6.07195E-05	0.0128
1.1730E-06	6.03086E-05	0.0128
1.4734E-06	6.04767E-05	0.0128
1.8507E-06	6.01720E-05	0.0129
2.3245E-06	6.08052E-05	0.0128
2.9198E-06	6.14087E-05	0.0127
3.6674E-06	6.15812E-05	0.0127
4.6064E-06	6.21881E-05	0.0127
5.7860E-06	6.36648E-05	0.0125
7.2675E-06	6.52137E-05	0.0124
9.1284E-06	6.69355E-05	0.0122
1.1466E-05	6.46500E-05	0.0124
1.4402E-05	6.73475E-05	0.0122
1.8089E-05	6.74484E-05	0.0122
2.2721E-05	6.91061E-05	0.0120
2.8539E-05	7.00918E-05	0.0119
3.5847E-05	7.05691E-05	0.0119
4.5026E-05	7.15846E-05	0.0118
5.6556E-05	7.24099E-05	0.0117
7.1037E-05	7.52736E-05	0.0115
8.9227E-05	7.58080E-05	0.0115
1.1207E-04	7.77814E-05	0.0113
1.4077E-04	7.96248E-05	0.0112
1.7682E-04	8.02382E-05	0.0112
2.2209E-04	8.18208E-05	0.0111
2.7896E-04	8.37632E-05	0.0109
3.5039E-04	8.42256E-05	0.0109
4.4011E-04	8.70775E-05	0.0107
5.5281E-04	8.85395E-05	0.0106
6.9436E-04	9.00312E-05	0.0105
8.7216E-04	9.07929E-05	0.0105
1.0955E-03	9.37442E-05	0.0103
1.3760E-03	9.52554E-05	0.0102
1.7283E-03	9.75467E-05	0.0101
2.1709E-03	9.82177E-05	0.0101
2.7267E-03	1.01978E-04	0.0099
3.4249E-03	1.05059E-04	0.0098
4.3019E-03	1.07860E-04	0.0096
5.4035E-03	1.10441E-04	0.0095
6.7871E-03	1.13571E-04	0.0094
8.5250E-03	1.17292E-04	0.0092
1.0708E-02	1.17662E-04	0.0092

1.3450E-02	1.24223E-04	0.0090
1.6894E-02	1.26593E-04	0.0089
2.1219E-02	1.35393E-04	0.0086
2.6653E-02	1.41723E-04	0.0084
3.3477E-02	1.47594E-04	0.0082
4.2050E-02	1.61153E-04	0.0079
5.2817E-02	1.67113E-04	0.0077
6.6341E-02	1.81143E-04	0.0074
8.3328E-02	1.92533E-04	0.0072
1.0467E-01	2.13963E-04	0.0068
1.3147E-01	2.31763E-04	0.0066
1.6513E-01	2.53322E-04	0.0063
2.0741E-01	2.87781E-04	0.0059
2.6052E-01	3.20271E-04	0.0056
3.2723E-01	3.52620E-04	0.0053
4.1102E-01	3.98019E-04	0.0050
5.1626E-01	4.47528E-04	0.0047
6.4846E-01	5.09897E-04	0.0044
8.1450E-01	5.75285E-04	0.0042
1.0231E+00	6.48613E-04	0.0039
1.2850E+00	7.33712E-04	0.0037
1.6141E+00	8.45219E-04	0.0034
2.0274E+00	9.38227E-04	0.0033
2.5465E+00	2.67196E-01	0.0002
3.1985E+00	0.00000E+00	0.0000
4.0175E+00	0.00000E+00	0.0000
5.0463E+00	0.00000E+00	0.0000
6.3384E+00	0.00000E+00	0.0000
7.9614E+00	0.00000E+00	0.0000
1.0000E+01	0.00000E+00	0.0000
total	2.81700E-01	0.0002

lanalysis of the results in the tally fluctuation chart bin (tfc) for tally 11 with nps =
100000000 print table 160

normed average tally per history = 2.81700E-01	unnormed average tally per
history = 2.81700E-01	history = 2.81700E-01
estimated tally relative error = 0.0002	estimated variance of the
variance = 0.0000	variance = 0.0000
relative error from zero tallies = 0.0002	relative error from nonzero
scores = 0.0000	scores = 0.0000
number of nonzero history tallies = 28288363	efficiency for the nonzero
tallies = 0.2829	tallies = 0.2829
history number of largest tally = 2	largest unnormalized history
tally = 1.00000E+00	tally = 1.00000E+00
(largest tally)/(average tally) = 3.54987E+00	(largest tally)/(avg nonzero
tally) = 1.00420E+00	tally) = 1.00420E+00
(confidence interval shift)/mean = 0.0000	shifted confidence interval
center = 2.81700E-01	center = 2.81700E-01

if the largest history score sampled so far were to occur on the next history, the tfc bin quantities would change as follows:

estimated quantities	value at nps	value at nps+1
----------------------	--------------	----------------

value (nps+1)/value (nps)-1.

mean	2.81700E-01
2.81700E-01	0.000000
relative error	1.59433E-04
1.59433E-04	0.000000
variance of the variance	9.43778E-09
9.43778E-09	0.000000
shifted center	2.81700E-01
2.81700E-01	0.000000
figure of merit	6.54683E+05
6.54683E+05	0.000000

the 100 largest history tallies appear to have a maximum value of about 1.00000E+00
the large score tail of the empirical history score probability density function appears to have no unsampled regions.

=====
=====
results of 10 statistical checks for the estimated answer for the tally
fluctuation chart (tfc) bin of tally 11

tfc bin	--mean--	-----relative error-----	----variance of the	
variance----	--figure of merit--	-pdf-	value	decrease
behavior	behavior	value	decrease	rate
rate	value	behavior	slope	decrease
desired	random	<0.10	yes	1/sqrt (nps)
1/nps	constant	random	>3.00	<0.10
observed	random	0.00	yes	yes
yes	constant	random	10.00	0.00
passed?	yes	yes	yes	yes
yes	yes	yes	yes	yes

=====
=====
this tally meets the statistical criteria used to form confidence intervals: check the
tally fluctuation chart to verify.
the results in other bins associated with this tally may not meet these statistical criteria.

estimated asymmetric confidence interval(1,2,3 sigma): 2.8166E-01 to 2.8175E-01; 2.8161E-01
to 2.8179E-01; 2.8157E-01 to 2.8183E-01
estimated symmetric confidence interval(1,2,3 sigma): 2.8166E-01 to 2.8175E-01; 2.8161E-01
to 2.8179E-01; 2.8157E-01 to 2.8183E-01

fom = (histories/minute)*(f(x) signal-to-noise ratio)**2 = (1.664E+06)*(6.272E-01)**2 =
(1.664E+06)*(3.934E-01) = 6.547E+05

1status of the statistical checks used to form confidence intervals for the mean for each
tally bin

tally result of statistical checks for the tfc bin (the first check not passed is listed) and error magnitude check for all bins

1 passed the 10 statistical checks for the tally fluctuation chart bin
result
passed all bin error check: 206 tally bins had 107 bins with zeros and 0
bins with relative errors exceeding 0.10

11 passed the 10 statistical checks for the tally fluctuation chart bin
result
passed all bin error check: 206 tally bins had 12 bins with zeros and 0
bins with relative errors exceeding 0.10

the 10 statistical checks are only for the tally fluctuation chart bin and do not apply to other tally bins.

the tally bins with zeros may or may not be correct: compare the source, cutoffs, multipliers, et cetera with the tally bins.

1tally fluctuation charts

nps	tally 1					tally 11				
	mean	error	vov	slope	fom	mean	error	vov	slope	fom
8192000	1.0000E+00	0.0000	0.0000	10.0	1.0E+30	2.8189E-01	0.0006	0.0000	10.0	655499
16384000	1.0000E+00	0.0000	0.0000	10.0	1.0E+30	2.8181E-01	0.0004	0.0000	10.0	655534
24576000	1.0000E+00	0.0000	0.0000	10.0	1.0E+30	2.8174E-01	0.0003	0.0000	10.0	654996
32768000	1.0000E+00	0.0000	0.0000	10.0	1.0E+30	2.8178E-01	0.0003	0.0000	10.0	654876
40960000	1.0000E+00	0.0000	0.0000	10.0	1.0E+30	2.8178E-01	0.0002	0.0000	10.0	655099
49152000	1.0000E+00	0.0000	0.0000	10.0	1.0E+30	2.8176E-01	0.0002	0.0000	10.0	654857
57344000	1.0000E+00	0.0000	0.0000	10.0	1.0E+30	2.8176E-01	0.0002	0.0000	10.0	654925
65536000	1.0000E+00	0.0000	0.0000	10.0	1.0E+30	2.8169E-01	0.0002	0.0000	10.0	654647
73728000	1.0000E+00	0.0000	0.0000	10.0	1.0E+30	2.8172E-01	0.0002	0.0000	10.0	654777
81920000	1.0000E+00	0.0000	0.0000	10.0	1.0E+30	2.8172E-01	0.0002	0.0000	10.0	654851
90112000	1.0000E+00	0.0000	0.0000	10.0	1.0E+30	2.8172E-01	0.0002	0.0000	10.0	654788
98304000	1.0000E+00	0.0000	0.0000	10.0	1.0E+30	2.8170E-01	0.0002	0.0000	10.0	654709
100000000	1.0000E+00	0.0000	0.0000	10.0	1.0E+30	2.8170E-01	0.0002	0.0000	10.0	654683

dump no. 6 on file runtpi nps = 100000000 coll = 2105211924 ctm =
60.09 nrn = 20651069003

1 warning message so far.

run terminated when 100000000 particle histories were done.

computer time = 60.09 minutes

mcnpx version 2.6.0 Wed Apr 09 08:00:00 MST 2008

09/19/14 12:50:27

probid = 09/19/14 11:50:21

B.5 Mathematica Skripte

Im Folgenden sind die drei verwendeten *Mathematica* Skripte wiedergegeben. Zuerst die analytische Abschätzung für jeweils ein Isotop; zweitens das Skript zum Kombinieren zweier Isotope und Erzeugen des Gesamtergebnisses; und drittens das *Mathematica* Skript zum Berechnen der Attenuation durch Blei. Die einzelnen Schritte werden in den Skripten in der Form „(* Kommentar *)“ erläutert.

B.5.1 Analytische Abschätzung für jeweils ein Isotop

Da die Tabellen für die im *Mathematica* Skript zur Auswahl stehenden Targets und Neutronenquellen im PDF-Druck nicht vollständig wiedergegeben werden können, sind sie in Tabelle B.5 und Tabelle B.6 vollständig wiedergegeben. Danach folgt das *Mathematica* Skript selbst.

Target	Isotop	Masse	Δ Masse	wt%	Δ wt%	Referenz	Fläche	Δ Fläche	Dicke	Δ Dicke
PM1	Pu-239	12.5 g	0.3 g	95.39	0.03	Berndt2002	$0.75 \cdot 1.55 \text{ cm}^2$	$((0.75-0.01)^2 + (1.55-0.01)^2)^{1/2} \text{ cm}^2$	0.75 cm	0.75 cm /100
PM1	Pu-240	12.5 g	0.3 g	4.53	0.03	Berndt2002	$0.75 \cdot 1.55 \text{ cm}^2$	$((0.75-0.01)^2 + (1.55-0.01)^2)^{1/2} \text{ cm}^2$	0.75 cm	0.75 cm /100
HEU	U-235	610 g	1 g	90	1	Chichester2012	$10.2 \cdot 10.2 \text{ cm}^2$	$10.2 \cdot 10.2 \text{ cm}^2 /100$	0.3 cm	0.3 cm /100
HEU	U-238	610 g	1 g	10	1	Chichester2012	$10.2 \cdot 10.2 \text{ cm}^2$	$10.2 \cdot 10.2 \text{ cm}^2 /100$	0.3 cm	0.3 cm /100
Pu-239	Pu-239	1.0 g	0.01 g	95	0.01	Postelt	1 cm^2	0.01 cm^2	0.05 cm	0.001 cm
Pu-240	Pu-240	1.0 g	0.01 g	5	0.01	Postelt	1 cm^2	0.01 cm^2	0.05 cm	0.001 cm
U-235	U-235	1.0 g	0.01 g	90	0.01	Postelt	1 cm^2	0.01 cm^2	0.05 cm	0.05 cm /100
U-238	U-238	1.0 g	0.01 g	10	0.01	Postelt	1 cm^2	0.01 cm^2	0.05 cm	0.05 cm /100
INT-DU	U-235	1990 g	1 g	0.3	0.1	Postelt,Schumann	$5 \cdot 5 \text{ cm}^2$	$5 \cdot 5 \text{ cm}^2 /100$	4 cm	4 cm /100
INT-DU	U-238	1990 g	1 g	99.7	0.1	Postelt,Schumann	$5 \cdot 5 \text{ cm}^2$	$5 \cdot 5 \text{ cm}^2 /100$	4 cm	4 cm /100
BNC-Pu	Pu-239	$429.3 \cdot 10^{-6} \text{ g}$	$1.8 \cdot 10^{-6} \text{ g}$	99.97	0.01	Postelt, Gatera	$\pi \text{ cm}^2$	$\pi \text{ cm}^2 /100$	$7 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$	$7 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$
BNC-Pu	Pu-240	$429.3 \cdot 10^{-6} \text{ g}$	$1.8 \cdot 10^{-6} \text{ g}$	0.03	0.01	Postelt, Gatera	$\pi \text{ cm}^2$	$\pi \text{ cm}^2 /100$	$7 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$	$7 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$
ITU-PuO2	Pu-239	51 g	1 g	93	1	Postelt,Zsigrai	$51 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (1 \text{ cm})^*$	$51 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (1 \text{ cm}) / 100^*$	1 cm	1 cm /100
ITU-PuO2	Pu-240	51 g	1 g	7	1	Postelt,Zsigrai	$51 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (1 \text{ cm})^*$	$51 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (1 \text{ cm}) / 100^*$	1 cm	1 cm /100
ITU-Pu5	Pu-239	110 g	1 g	86	1	Postelt,Zsigrai	$110 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (0.67 \text{ cm})^*$	$110 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (0.67 \text{ cm}) / 100^*$	0.67 cm	0.67 cm /100
ITU-Pu5	Pu-240	110 g	1 g	14	1	Postelt,Zsigrai	$110 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (0.67 \text{ cm})^*$	$110 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (0.67 \text{ cm}) / 100^*$	0.67 cm	0.67 cm /100
ITU-Pu20	Pu-239	158 g	1 g	85	1	Postelt,Zsigrai	$158 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (0.33 \text{ cm})^*$	$158 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (0.33 \text{ cm}) / 100^*$	0.33 cm	0.33 cm /100
ITU-Pu20	Pu-240	158 g	1 g	15	1	Postelt,Zsigrai	$158 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (0.33 \text{ cm})^*$	$158 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (0.33 \text{ cm}) / 100^*$	0.33 cm	0.33 cm /100
ITU-UO2	U-235	707 g	1 g	83	1	Postelt,Zsigrai	$707 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (4 \text{ cm})^*$	$707 \text{ g} / \rho_{\text{Pu}} / (4 \text{ cm}) / 100^*$	4 cm	4 cm /100
ITU-UO2	U-238	707 g	1 g	17	1	Postelt,Zsigrai	$707 \text{ g} / \rho_{\text{U}} / (4 \text{ cm})^*$	$707 \text{ g} / \rho_{\text{U}} / (4 \text{ cm}) / 100^*$	4 cm	4 cm /100
ITU-metU	U-235	183 g	1 g	93	1	Postelt,Zsigrai	$183 \text{ g} / \rho_{\text{U}} / (1 \text{ cm})^*$	$183 \text{ g} / \rho_{\text{U}} / (1 \text{ cm}) / 100^*$	1 cm	1 cm /100
ITU-metU	U-238	183 g	1 g	7	1	Postelt,Zsigrai	$183 \text{ g} / \rho_{\text{U}} / (1 \text{ cm})^*$	$183 \text{ g} / \rho_{\text{U}} / (1 \text{ cm}) / 100^*$	1 cm	1 cm /100
ITU-U3O8	U-235	2375 g	1 g	5	1	Postelt,Zsigrai	$2375 \text{ g} / \rho_{\text{U}} / (6 \text{ cm})^*$	$2375 \text{ g} / \rho_{\text{U}} / (6 \text{ cm}) / 100^*$	6 cm	6 cm /100
ITU-U3O8	U-238	2375 g	1 g	95	1	Postelt,Zsigrai	$2375 \text{ g} / \rho_{\text{U}} / (6 \text{ cm})^*$	$2375 \text{ g} / \rho_{\text{U}} / (6 \text{ cm}) / 100^*$	6 cm	6 cm /100

* Mit den Dichten von Plutonium $\rho_{\text{Pu}} = 19.816 \text{ g/cm}^3$ und Uran $\rho_{\text{U}} = 19.16 \text{ g/cm}^3$.

Tabelle B.5 – Targets, wie sie im *Mathematica* Skript zur Auswahl stehen.

Neutronenquelle	Neutronenflussdichte	max. Targetfläche	Neutronenenergie	Kommentar	Referenz	Δ_{rel}	Referenz (kont.)
FRMIII cold	$7.3 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	1.4 cm \cdot 3.8 cm	0.00183 eV	"_"	Kudejova2008	0.1	Petry2003
FRMIII th eqv	$2.7 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	1.4 cm \cdot 3.8 cm	0.025 eV	"_"	Kudejova2008	0.1	Petry2003
BNC cont	0	2 cm \cdot 2 cm	0.00183 eV	"_"	"_"	0.5	Revay2004
BNC th eqv	$5 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	2 cm \cdot 2 cm	0.025 eV	"_"	Revay2008	0.5	Revay2004
FR2-Bi	$2 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	„not specified“	760 eV	Bismut-Filter	Matussek1970	"_"	"_"
FR2-Sc	$2 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	$\pi(2 \text{ cm})^2$	2000 eV	Scandium-Filter	Ottmar1972	"_"	"_"
DD	$2 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	"_"	$2.5 \cdot 10^6 \text{ eV}$	$\phi = 10^8 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$	Chichester2010	0.2	Fantidis2012
DT	$2 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	"_"	$14.1 \cdot 10^6 \text{ eV}$	$\phi = 10^8 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$	Chichester2010, Reijonen2005	0.2	Fantidis2012
TT	$2 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	"_"	$4.5 \cdot 10^6 \text{ eV}$	$E = 0.9 \text{ eV}$	Chichester2010, Reijonen2005	0.2	Fantidis2012
1 mg Cf-252	$2.31 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1} / (4 \cdot \pi \cdot r^2)$	"_"	$2.14 \cdot 10^6 \text{ eV}$	"_"	Miller2012	0.15	Miller2012
1 Ci AmBe	$2.7 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1} / (4 \cdot \pi \cdot r^2)$	"_"	$4.5 \cdot 10^6 \text{ eV}$	$E \approx 4.5 \cdot 10^6 \text{ eV}$	Gozanni1981	0.15	Guarrini1971
DD therm factor	0.2817	"_"	0.025 eV	ϕ : factor to DD	Chichester2010	0.3	Fantidis2012
10 Ci AmBe	$2.2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1} / (4 \cdot \pi \cdot r^2)$	"_"	$4.5 \cdot 10^6 \text{ eV}$	$E \approx 4.5 \cdot 10^6 \text{ eV}$	Lierse	0.15	Guarrini1971
AmBe therm factor	0.2817	"_"	0.025 eV	ϕ : factor to AmBe	Lierse, Postelt	0.3	Guarrini1971, Postelt
DT therm factor	0.2817	"_"	0.025 eV	ϕ : factor to DT	Chichester2010, Reijonen2005, Postelt	0.3	Fantidis2012, Postelt
DD INT factor	$0.2817 \cdot 2 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1} / (4 \cdot \pi \cdot (15 \text{ cm})^2)$	"_"	0.025 eV	"_"	Schumann, Postelt	0.3	Postelt
DT INT factor	$0.2817 \cdot 2 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1} / (4 \cdot \pi \cdot (15 \text{ cm})^2)$	"_"	0.025 eV	"_"	Schumann, Postelt	0.3	Postelt
AmBe ITU factor	$0.2817 \cdot 2.2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1} / (4 \cdot \pi \cdot (10.5 \text{ cm})^2)$	"_"	0.025 eV	"_"	Lierse, Postelt	0.3	Postelt

 Tabelle B.6 – Neutronenquellen, wie sie im *Mathematica* Skript zur Auswahl stehen.

(n,γ) estimates with plots

```
In[240]:= mNo = "GM105_" ; (* mathematica file version number *)
```

Assumptions

All assumptions defining our sample and neutron source

1. Run the following two cells to make the drop down menus work (shortcut: "shift"+"enter" in each cell)
2. Choose a sample isotope and a neutron source from the drop down menus
3. Run the whole script (shortcut: "alt" -> "v" -> "o")

```
In[241]:= Style["The targets can be changed in the first table and selected below:",  
  FontColor → Red, FontWeight → Bold]  
PopupMenu[Dynamic[Sample], {"Pu-239" → "Pu-239", "Pu-240" → "Pu-240",  
  "U-235" → "U-235", "U-238" → "U-238", "HEU-235" → "HEU U-235",  
  "HEU-238" → "HEU U-238", "PM1-239" → "PM1 Pu-239",  
  "PM1-240" → "PM1 Pu-240", "-" → " - - - measurments: - - - ",  
  "INT-DU-235" → "INT-DU U-235", "INT-DU-238" → "INT-DU U-238",  
  "BNC-Pu-239" → "BNC-Pu Pu-239", "BNC-Pu-240" → "BNC-Pu Pu-240",  
  "ITU-PuO2-239" → "ITU-PuO2 Pu-239", "ITU-PuO2-240" → "ITU-PuO2 Pu-240",  
  "ITU-Pu5-239" → "ITU-Pu5 Pu-239", "ITU-Pu5-240" → "ITU-Pu5 Pu-240",  
  "ITU-Pu20-239" → "ITU-Pu20 Pu-239", "ITU-Pu20-240" → "ITU-Pu20 Pu-240",  
  "ITU-UO2-235" → "ITU-UO2 U-235", "ITU-UO2-238" → "ITU-UO2 U-238",  
  "ITU-metU-235" → "ITU-metU U-235", "ITU-metU-238" → "ITU-metU U-238",  
  "ITU-U308-235" → "ITU-U308 U-235", "ITU-U308-238" → "ITU-U308 U-238"}]  
target =
```

□	"Isotope"	"mass"	"Δm"	"wt%"	"Δwt%"	"reference"
"PM1"	"Pu-239"	12.5 g	0.3 g	95.39	0.03	"Berndt2002"
"PM1"	"Pu-240"	12.5 g	0.3 g	4.53	0.03	"Berndt2002"
"HEU"	"U-235"	610 g	1 g	90	1	"Chichester2012"
"HEU"	"U-238"	610 g	1 g	10	1	"Chichester2012"
"Pu-239"	"Pu-239"	1.0 g	0.01 g	95	0.01	"Postelt"
"Pu-240"	"Pu-240"	1.0 g	0.01 g	5	0.01	"Postelt"
"U-235"	"U-235"	1.0 g	0.01 g	90	0.01	"Postelt"
"U-238"	"U-238"	1.0 g	0.01 g	10	0.01	"Postelt"
"INT-DU"	"U-235"	1990 g	1 g	0.3	0.1	"Postelt,Schumann"
"INT-DU"	"U-238"	1990 g	1 g	99.7	0.1	"Postelt,Schumann"
"BNC-Pu"	"Pu-239"	429.3×10^{-6} g	1.8×10^{-6} g	99.97	0.01	"Postelt, Gatera"
"BNC-Pu"	"Pu-240"	429.3×10^{-6} g	1.8×10^{-6} g	0.03	0.01	"Postelt, Gatera"
"ITU-PuO2"	"Pu-239"	51 g	1 g	93	1	"Postelt,Zsigrai"
"ITU-PuO2"	"Pu-240"	51 g	1 g	7	1	"Postelt,Zsigrai"
"ITU-Pu5"	"Pu-239"	110 g	1 g	86	1	"Postelt,Zsigrai"
"ITU-Pu5"	"Pu-240"	110 g	1 g	14	1	"Postelt,Zsigrai"
"ITU-Pu20"	"Pu-239"	158 g	1 g	85	1	"Postelt,Zsigrai"
"ITU-Pu20"	"Pu-240"	158 g	1 g	15	1	"Postelt,Zsigrai"
"ITU-UO2"	"U-235"	707 g	1 g	83	1	"Postelt,Zsigrai"
"ITU-UO2"	"U-238"	707 g	1 g	17	1	"Postelt,Zsigrai"
"ITU-metU"	"U-235"	183 g	1 g	93	1	"Postelt,Zsigrai"
"ITU-metU"	"U-238"	183 g	1 g	7	1	"Postelt,Zsigrai"
"ITU-U308"	"U-235"	2375 g	1 g	5	1	"Postelt,Zsigrai"
"ITU-U308"	"U-238"	2375 g	1 g	95	1	"Postelt,Zsigrai"

```

;
(*uncertainties, "wt%" and "wt" for U-238 are not given
  by Chichester2012 and therefore introduced by the authors*)
(* The sample isotope determines the crosssections
  and intensities [(n,γ) and fission] *)
isotopes =

```

□	"intensity reference"	"Westcott g _γ "	"Westcott g _f "	"Westcott i
"Pu-239"	"Chrien1985 (stat. uncert.)"	1.142	1.058	1.080
"Pu-240"	"CapGam ¹ "	1.027	1.045	1.028
"U-235"	"CapGam"	0.991	0.977	0.982
"U-238"	"CapGam ² "	1.003	1.002	1.100

```

;
(*.1 might be from White1998, then arbitrary intensitives *)
(* 2 @3913.1 and @3406.9 adapted PGAA-database intensities*)
(* Westcott g factor source: JENDL - http://
  wwwndc.jaea.go.jp/jendl/j40/j40f10.html *)

```

Out[241]= The targets can be changed in the first table and selected below:

Out[242]=

Definition of the source properties:

In[245]:= r = 2 cm; (* distance between radioactive source and target*)
 source =

"source"	"fix neutron flux"	"max. target area"	"
"FRMII cold"	$7.3 \times 10^9 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	1.4 cm × 3.8 cm	0.
"FRMII th eqv"	$2.7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	1.4 cm × 3.8 cm	(
"BNC cont"	"0"	2 cm × 2 cm	0.
"BNC th eqv"	$5 \times 10^7 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	2 cm × 2 cm	(
"FR2-Bi"	$2 \times 10^7 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	"not specified"	
"FR2-Sc"	$2 \times 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	$\pi (2 \text{ cm})^2$	
"DD"	$2 \times 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	"-"	2.
"DT"	$2 \times 10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	"-"	14
"TT"	$2 \times 10^9 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	"-"	4.
"1 mg Cf-252"	$2.31 \times 10^9 \text{ s}^{-1} / (4 \pi r^2)$	"-"	2.:
"1 Ci AmBe"	$2.7 \times 10^6 \text{ s}^{-1} / (4 \pi r^2)$	"-"	4.
"DD therm factor"	0.2817	"-"	(
"10 Ci AmBe"	$2.2 \times 10^7 \text{ s}^{-1} / (4 \pi r^2)$	"-"	4.
"AmBe therm factor"	0.2817	"-"	(
"DT therm factor"	0.2817	"-"	(
"DD INT factor"	$0.2817 \times 2 \times 10^6 \text{ s}^{-1} / (4 \pi (15 \text{ cm})^2)$	"-"	(
"DT INT factor"	$0.2817 \times 2 \times 10^8 \text{ s}^{-1} / (4 \pi (15 \text{ cm})^2)$	"-"	(
"AmBe ITU factor"	$0.2817 \times 2.2 \times 10^7 \text{ s}^{-1} / (4 \pi (10.5 \text{ cm})^2)$	"-"	(

```

;
(* DD:
  109 s-1 ≈ 105 cm-2 s-1 at target position (Reijonen2004) (Reijonen2005: 5 109)
  ⇒ "DT" 109 s-1 → 105 cm-2 s-1 ; "TT" 1012 s-1 → 108 cm-2 s-1 *)
(* OR Chichester2010 DD-ENG with 2 106 cm-2 s-1 *)
(* The "fix neutron flux" is the cold equivalent for "FRMII cold",
the thermal equivalent neutron flux for "FRMII th eqv" and "Budap th eqv", and
the total neutron flux for "DD", "DT",
"TT", "1 mg Cf-252" and "1 Ci AmBe" *)
(* relative uncertainty for the continuous flux are large mostly
due to rough approximations in the interpolating function. Only
linear interpolation between a few datapoint is considered here *)
(* "-" is inserted where an entry is not necessary or available *)
(* "DD, DT and AmBe thermalised" are additionally thermalised,
the factor and neutron distribution are calculated with mcnp for
DD. Therefore the moderation is overestimated for DT and AmBe,
which have higher neutron energies than the DD. The
uncertainties are accordingly higher. *)
Style["The neutron sources can be changed in the table above
and selected below:", FontColor → Red, FontWeight → Bold]
PopupMenu[Dynamic[NeutronSource], {"FRMII thermal" → "FRMII thermal equivalent",
"FRMII cold" → "FRMII cold",
"Budapest cont" → "Budapest Neutron Center reactor (continuous)",
"Budapest thermal" → "Budapest Neutron Center reactor thermal equivalent",
"FR2-Bi" → "FR2 reactor with Bismuth thermal equivalent",

```

```

"FR2-Sc" → "FR2 reactor with Scandium thermal equivalent",
"DD" → "Deuterium-Deuterium Electronic Neutron Generator",
"DT" → "Deuterium-Tritium Electronic Neutron Generator",
"TT" → "Tritium-Tritium Electronic Neutron Generator",
"Cf-252" → "1 mg Californium-252",
"1 Ci AmBe" → "1 Ci Americium-241/Beryllium",
"10 Ci AmBe" → "10 Ci Americium-241/Beryllium",
"DD therm factor" → "thermalised Deuterium-Deuterium Generator",
"DT therm factor" → "thermalised Deuterium-Tritium Generator",
"AmBe therm factor" → "thermalised 10 Ci Americium-241/Beryllium",
"-" → " - - - measurments: - - - ",
"DD INT factor" → "thermalised INT Deuterium-Deuterium Generator",
"DT INT factor" → "thermalised INT Deuterium-Tritium Generator",
"AmBe ITU factor" → "thermalised ITU Americium-241/Beryllium"]}

```

Out[247]= The neutron sources can be changed in the table above and selected below:

Out[248]= thermalised ITU Americium–241/Beryllium

V

Definitions

```

In[249]:= SampleIsotope = Which[
  (* sample isotope - automatically assigned *)
  Sample == "PM1-239", target[[2, 2]],
  Sample == "PM1-240", target[[3, 2]],
  Sample == "HEU-235", target[[4, 2]],
  Sample == "HEU-238", target[[5, 2]],
  Sample == "Pu-239", target[[6, 2]],
  Sample == "Pu-240", target[[7, 2]],
  Sample == "U-235", target[[8, 2]],
  Sample == "U-238", target[[9, 2]],
  Sample == "INT-DU-235", target[[10, 2]],
  Sample == "INT-DU-238", target[[11, 2]],
  Sample == "BNC-Pu-239", target[[12, 2]],
  Sample == "BNC-Pu-240", target[[13, 2]],
  Sample == "ITU-PuO2-239", target[[14, 2]],
  Sample == "ITU-PuO2-240", target[[15, 2]],
  Sample == "ITU-Pu5-239", target[[16, 2]],
  Sample == "ITU-Pu5-240", target[[17, 2]],
  Sample == "ITU-Pu20-239", target[[18, 2]],
  Sample == "ITU-Pu20-240", target[[19, 2]],
  Sample == "ITU-UO2-235", target[[20, 2]],
  Sample == "ITU-UO2-238", target[[21, 2]],
  Sample == "ITU-metU-235", target[[22, 2]],
  Sample == "ITU-metU-238", target[[23, 2]],
  Sample == "ITU-U308-235", target[[24, 2]],
  Sample == "ITU-U308-238", target[[25, 2]]]

```

Out[249]= Pu-240

```

In[250]:= m = Which[
  (* sample mass - automatically assigned *)

```

```

Sample == "PM1-239", target[[2, 3]],
Sample == "PM1-240", target[[3, 3]],
Sample == "HEU-235", target[[4, 3]],
Sample == "HEU-238", target[[5, 3]],
Sample == "Pu-239", target[[6, 3]],
Sample == "Pu-240", target[[7, 3]],
Sample == "U-235", target[[8, 3]],
Sample == "U-238", target[[9, 3]],
Sample == "INT-DU-235", target[[10, 3]],
Sample == "INT-DU-238", target[[11, 3]],
Sample == "BNC-Pu-239", target[[12, 3]],
Sample == "BNC-Pu-240", target[[13, 3]],
Sample == "ITU-PuO2-239", target[[14, 3]],
Sample == "ITU-PuO2-240", target[[15, 3]],
Sample == "ITU-Pu5-239", target[[16, 3]],
Sample == "ITU-Pu5-240", target[[17, 3]],
Sample == "ITU-Pu20-239", target[[18, 3]],
Sample == "ITU-Pu20-240", target[[19, 3]],
Sample == "ITU-UO2-235", target[[20, 3]],
Sample == "ITU-UO2-238", target[[21, 3]],
Sample == "ITU-metU-235", target[[22, 3]],
Sample == "ITU-metU-238", target[[23, 3]],
Sample == "ITU-U3O8-235", target[[24, 3]],
Sample == "ITU-U3O8-238", target[[25, 3]]]

```

Δm = Which[

(* sample mass uncertainty - automatically assigned *)

```

Sample == "PM1-239", target[[2, 4]],
Sample == "PM1-240", target[[3, 4]],
Sample == "HEU-235", target[[4, 4]],
Sample == "HEU-238", target[[5, 4]],
Sample == "Pu-239", target[[6, 4]],
Sample == "Pu-240", target[[7, 4]],
Sample == "U-235", target[[8, 4]],
Sample == "U-238", target[[9, 4]],
Sample == "INT-DU-235", target[[10, 4]],
Sample == "INT-DU-238", target[[11, 4]],
Sample == "BNC-Pu-239", target[[12, 4]],
Sample == "BNC-Pu-240", target[[13, 4]],
Sample == "ITU-PuO2-239", target[[14, 4]],
Sample == "ITU-PuO2-240", target[[15, 4]],
Sample == "ITU-Pu5-239", target[[16, 4]],
Sample == "ITU-Pu5-240", target[[17, 4]],
Sample == "ITU-Pu20-239", target[[18, 4]],
Sample == "ITU-Pu20-240", target[[19, 4]],
Sample == "ITU-UO2-235", target[[20, 4]],
Sample == "ITU-UO2-238", target[[21, 4]],
Sample == "ITU-metU-235", target[[22, 4]],
Sample == "ITU-metU-238", target[[23, 4]],
Sample == "ITU-U3O8-235", target[[24, 4]],
Sample == "ITU-U3O8-238", target[[25, 4]]]

```

Out[250]= 1. g

Out[251]= 0.01 g

```

ln[252]:= a = Which[
  (* isotopic abundance - automatically assigned *)
  Sample == "Pm1-239", target[[2, 5]],
  Sample == "Pm1-240", target[[3, 5]],
  Sample == "HEU-235", target[[4, 5]],
  Sample == "HEU-238", target[[5, 5]],
  Sample == "Pu-239", target[[6, 5]],
  Sample == "Pu-240", target[[7, 5]],
  Sample == "U-235", target[[8, 5]],
  Sample == "U-238", target[[9, 5]],
  Sample == "INT-DU-235", target[[10, 5]],
  Sample == "INT-DU-238", target[[11, 5]],
  Sample == "BNC-Pu-239", target[[12, 5]],
  Sample == "BNC-Pu-240", target[[13, 5]],
  Sample == "ITU-PuO2-239", target[[14, 5]],
  Sample == "ITU-PuO2-240", target[[15, 5]],
  Sample == "ITU-Pu5-239", target[[16, 5]],
  Sample == "ITU-Pu5-240", target[[17, 5]],
  Sample == "ITU-Pu20-239", target[[18, 5]],
  Sample == "ITU-Pu20-240", target[[19, 5]],
  Sample == "ITU-UO2-235", target[[20, 5]],
  Sample == "ITU-UO2-238", target[[21, 5]],
  Sample == "ITU-metU-235", target[[22, 5]],
  Sample == "ITU-metU-238", target[[23, 5]],
  Sample == "ITU-U3O8-235", target[[24, 5]],
  Sample == "ITU-U3O8-238", target[[25, 5]]]
Δa = Which[
  (* isotopic abundance uncertainty - automatically assigned *)
  Sample == "Pm1-239", target[[2, 6]],
  Sample == "Pm1-240", target[[3, 6]],
  Sample == "HEU-235", target[[4, 6]],
  Sample == "HEU-238", target[[5, 6]],
  Sample == "Pu-239", target[[6, 6]],
  Sample == "Pu-240", target[[7, 6]],
  Sample == "U-235", target[[8, 6]],
  Sample == "U-238", target[[9, 6]],
  Sample == "INT-DU-235", target[[10, 6]],
  Sample == "INT-DU-238", target[[11, 6]],
  Sample == "BNC-Pu-239", target[[12, 6]],
  Sample == "BNC-Pu-240", target[[13, 6]],
  Sample == "ITU-PuO2-239", target[[14, 6]],
  Sample == "ITU-PuO2-240", target[[15, 6]],
  Sample == "ITU-Pu5-239", target[[16, 6]],
  Sample == "ITU-Pu5-240", target[[17, 6]],
  Sample == "ITU-Pu20-239", target[[18, 6]],
  Sample == "ITU-Pu20-240", target[[19, 6]],
  Sample == "ITU-UO2-235", target[[20, 6]],
  Sample == "ITU-UO2-238", target[[21, 6]],
  Sample == "ITU-metU-235", target[[22, 6]],
  Sample == "ITU-metU-238", target[[23, 6]],
  Sample == "ITU-U3O8-235", target[[24, 6]],
  Sample == "ITU-U3O8-238", target[[25, 6]]]

```

Out[252]= 5

Out[253]= 0.01

```

In[254]:= a2 = Which[
  (* isotopic abundance - automatically assigned *)
  Sample == "Pm1-239", target[[3, 5]],
  Sample == "Pm1-240", target[[2, 5]],
  Sample == "HEU-235", target[[5, 5]],
  Sample == "HEU-238", target[[4, 5]],
  Sample == "Pu-239", target[[7, 5]],
  Sample == "Pu-240", target[[6, 5]],
  Sample == "U-235", target[[9, 5]],
  Sample == "U-238", target[[8, 5]],
  Sample == "INT-DU-235", target[[11, 5]],
  Sample == "INT-DU-238", target[[10, 5]],
  Sample == "BNC-Pu-239", target[[13, 5]],
  Sample == "BNC-Pu-240", target[[12, 5]],
  Sample == "ITU-PuO2-239", target[[15, 5]],
  Sample == "ITU-PuO2-240", target[[14, 5]],
  Sample == "ITU-Pu5-239", target[[17, 5]],
  Sample == "ITU-Pu5-240", target[[16, 5]],
  Sample == "ITU-Pu20-239", target[[19, 5]],
  Sample == "ITU-Pu20-240", target[[18, 5]],
  Sample == "ITU-UO2-235", target[[21, 5]],
  Sample == "ITU-UO2-238", target[[20, 5]],
  Sample == "ITU-metU-235", target[[23, 5]],
  Sample == "ITU-metU-238", target[[22, 5]],
  Sample == "ITU-U3O8-235", target[[25, 5]],
  Sample == "ITU-U3O8-238", target[[24, 5]]]
Δa2 = Which[
  (* isotopic abundance uncertainty - automatically assigned *)
  Sample == "Pm1-239", target[[3, 6]],
  Sample == "Pm1-240", target[[2, 6]],
  Sample == "HEU-235", target[[5, 6]],
  Sample == "HEU-238", target[[4, 6]],
  Sample == "Pu-239", target[[7, 6]],
  Sample == "Pu-240", target[[6, 6]],
  Sample == "U-235", target[[9, 6]],
  Sample == "U-238", target[[8, 6]],
  Sample == "INT-DU-235", target[[11, 6]],
  Sample == "INT-DU-238", target[[10, 6]],
  Sample == "BNC-Pu-239", target[[13, 6]],
  Sample == "BNC-Pu-240", target[[12, 6]],
  Sample == "ITU-PuO2-239", target[[15, 6]],
  Sample == "ITU-PuO2-240", target[[14, 6]],
  Sample == "ITU-Pu5-239", target[[17, 6]],
  Sample == "ITU-Pu5-240", target[[16, 6]],
  Sample == "ITU-Pu20-239", target[[19, 6]],
  Sample == "ITU-Pu20-240", target[[18, 6]],
  Sample == "ITU-UO2-235", target[[21, 6]],
  Sample == "ITU-UO2-238", target[[20, 6]],
  Sample == "ITU-metU-235", target[[23, 6]],
  Sample == "ITU-metU-238", target[[22, 6]],
  Sample == "ITU-U3O8-235", target[[25, 6]],
  Sample == "ITU-U3O8-238", target[[24, 6]]]

```

Out[254]= 95

Out[255]= 0.01

```
In[256]:= FMSample = Which[
  (* isotopic abundance uncertainty - automatically assigned *)
  Sample == "PM1-239", "Plutonium",
  Sample == "PM1-240", "Plutonium",
  Sample == "HEU-235", "Uran",
  Sample == "HEU-238", "Uran",
  Sample == "Pu-239", "Plutonium",
  Sample == "Pu-240", "Plutonium",
  Sample == "U-235", "Uran",
  Sample == "U-238", "Uran",
  Sample == "INT-DU-235", "Uran",
  Sample == "INT-DU-238", "Uran",
  Sample == "BNC-Pu-239", "Plutonium",
  Sample == "BNC-Pu-240", "Plutonium",
  Sample == "ITU-PuO2-239", "Plutonium",
  Sample == "ITU-PuO2-240", "Plutonium",
  Sample == "ITU-Pu5-239", "Plutonium",
  Sample == "ITU-Pu5-240", "Plutonium",
  Sample == "ITU-Pu20-239", "Plutonium",
  Sample == "ITU-Pu20-240", "Plutonium",
  Sample == "ITU-UO2-235", "Uran",
  Sample == "ITU-UO2-238", "Uran",
  Sample == "ITU-metU-235", "Uran",
  Sample == "ITU-metU-238", "Uran",
  Sample == "ITU-U3O8-235", "Uran",
  Sample == "ITU-U3O8-238", "Uran"]
(* deutsch: Uran, englisch: uranium *)
```

Out[256]= Plutonium

```
In[257]:= A = Which[
  (* isotopic mass number - automatically assigned *)
  SampleIsotope == "Pu-239", 239,
  SampleIsotope == "U-235", 235,
  SampleIsotope == "Pu-240", 240,
  SampleIsotope == "U-238", 238]
```

Out[257]= 240

```
In[258]:= A2 = Which[
  (* isotopic mass number of the other isotope - automatically assigned *)
  SampleIsotope == "Pu-239", 240,
  SampleIsotope == "U-235", 238,
  SampleIsotope == "Pu-240", 239,
  SampleIsotope == "U-238", 235]
```

Out[258]= 239


```
In[259]:= WestcottGamma = Which[
  SampleIsotope == "Pu-239", isotopes[[2, 3]],
  SampleIsotope == "Pu-240", isotopes[[3, 3]],
  SampleIsotope == "U-235", isotopes[[4, 3]],
  SampleIsotope == "U-238", isotopes[[5, 3]]]
WestcottFission = Which[
  SampleIsotope == "Pu-239", isotopes[[2, 4]],
  SampleIsotope == "Pu-240", isotopes[[3, 4]],
  SampleIsotope == "U-235", isotopes[[4, 4]],
  SampleIsotope == "U-238", isotopes[[5, 4]]]
WestcottTotalPu239 = isotopes[[2, 5]];
WestcottTotalPu240 = isotopes[[3, 5]];
WestcottTotalU235 = isotopes[[4, 5]];
WestcottTotalU238 = isotopes[[5, 5]];
```

```
Out[259]= 1.027
```

```
Out[260]= 1.045
```

```
In[265]:= ColdFixCont = Which[
  NeutronSource == "FRMII cold", "Cold",
  NeutronSource == "FRMII thermal", "Fix",
  NeutronSource == "Budapest cont", "Cont",
  NeutronSource == "Budapest thermal", "Fix",
  NeutronSource == "FR2-Bi", "Fix",
  NeutronSource == "FR2-Sc", "Fix",
  NeutronSource == "DD", "Cont",
  NeutronSource == "DT", "Cont",
  NeutronSource == "TT", "Cont",
  NeutronSource == "Cf-252", "Cont",
  NeutronSource == "1 Ci AmBe", "Cont",
  NeutronSource == "DD therm factor", "Fix",
  NeutronSource == "10 Ci AmBe", "Cont",
  NeutronSource == "AmBe therm factor", "Fix",
  NeutronSource == "DT therm factor", "Fix",
  NeutronSource == "DD INT factor", "Fix",
  NeutronSource == "DT INT factor", "Fix",
  NeutronSource == "AmBe ITU factor", "Fix"
]
```

```
Out[265]= Fix
```

```

In[266]:= (*Names for the Neutronsources as they will
appear in the graphs from the Combined Graph script*)
(*now in German for the dissertation*)
SourceName = Which[
  NeutronSource == "FRMII cold", "Forschungsreaktor FRMII-kontinuierlich",
  NeutronSource == "FRMII thermal", "Forschungsreaktor FRMII",
  NeutronSource == "Budapest cont",
  "Forschungsreaktor Budapest Neutron Center-kontinuierlich",
  NeutronSource == "Budapest thermal",
  "Forschungsreaktor Budapest Neutron Center",
  NeutronSource == "FR2-Bi", "Forschungsreaktor FR2 mit Bismuth",
  NeutronSource == "FR2-Sc", "Forschungsreaktor FR2 mit Scandium",
  NeutronSource == "DD", "DeuteriumDeuterium Generator",
  NeutronSource == "DT", "DeuteriumTritium Generator",
  NeutronSource == "TT", "TritiumTritium Generator",
  NeutronSource == "Cf-252", "Californium",
  NeutronSource == "1 Ci AmBe", "1 Ci AmericiumBeryllium",
  NeutronSource == "DD therm factor",
  "thermalisierter DeuteriumDeuterium Generator",
  NeutronSource == "10 Ci AmBe", "10 Ci AmericiumBeryllium",
  NeutronSource == "AmBe therm factor",
  "thermalisierte AmericiumBeryllium Quelle",
  NeutronSource == "DT therm factor",
  "thermalisierter DeuteriumTritium Generator",
  NeutronSource == "DD INT factor",
  "thermalisierter INT DeuteriumDeuterium Generator",
  NeutronSource == "DT INT factor",
  "thermalisierter INT DeuteriumTritium Generator",
  NeutronSource == "AmBe ITU factor",
  "thermalisierte ITU AmericiumBeryllium Quelle"
]
Out[266]= thermalisierte ITU AmericiumBeryllium Quelle

```

In[267]:=

```

MaxArea = Which[
  (* Maximum area of the neutron beam - automatically assigned *)
  NeutronSource == "FRMII cold", source[[2, 3]],
  NeutronSource == "FRMII thermal", source[[3, 3]],
  NeutronSource == "Budapest cont", source[[4, 3]],
  NeutronSource == "Budapest thermal", source[[5, 3]],
  NeutronSource == "FR2-Bi", source[[6, 3]],
  NeutronSource == "FR2-Sc", source[[7, 3]],
  NeutronSource == "DD", source[[8, 3]],
  NeutronSource == "DT", source[[9, 3]],
  NeutronSource == "TT", source[[10, 3]],
  NeutronSource == "Cf-252", source[[11, 3]],
  NeutronSource == "1 Ci AmBe", source[[12, 3]],
  NeutronSource == "DD therm factor", source[[13, 3]],
  NeutronSource == "10 Ci AmBe", source[[14, 3]],
  NeutronSource == "AmBe therm factor", source[[15, 3]],
  NeutronSource == "DT therm factor", source[[16, 3]],
  NeutronSource == "DD INT factor", source[[17, 3]],
  NeutronSource == "DT INT factor", source[[18, 3]],
  NeutronSource == "AmBe ITU factor", source[[19, 3]]
]

```

Out[267]= -

In[268]:=

```

TargetArea = Which[
  (* target area - automatically assigned *)
  Sample == "PM1-239", target[[3, 8]],
  Sample == "PM1-240", target[[3, 8]],
  Sample == "HEU-235", target[[4, 8]],
  Sample == "HEU-238", target[[5, 8]],
  Sample == "Pu-239", target[[6, 8]],
  Sample == "Pu-240", target[[7, 8]],
  Sample == "U-235", target[[8, 8]],
  Sample == "U-238", target[[9, 8]],
  Sample == "INT-DU-235", target[[10, 8]],
  Sample == "INT-DU-238", target[[11, 8]],
  Sample == "BNC-Pu-239", target[[12, 8]],
  Sample == "BNC-Pu-240", target[[13, 8]],
  Sample == "ITU-PuO2-239", target[[14, 8]],
  Sample == "ITU-PuO2-240", target[[15, 8]],
  Sample == "ITU-Pu5-239", target[[16, 8]],
  Sample == "ITU-Pu5-240", target[[17, 8]],
  Sample == "ITU-Pu20-239", target[[18, 8]],
  Sample == "ITU-Pu20-240", target[[19, 8]],
  Sample == "ITU-UO2-235", target[[20, 8]],
  Sample == "ITU-UO2-238", target[[21, 8]],
  Sample == "ITU-metU-235", target[[22, 8]],
  Sample == "ITU-metU-238", target[[23, 8]],
  Sample == "ITU-U3O8-235", target[[24, 8]],
  Sample == "ITU-U3O8-238", target[[25, 8]]
]

```

Out[268]= cm²

```
In[269]:= ΔTargetArea = Which[
  (* uncertainty of the target area - automatically assigned *)
  Sample == "PM1-239", target[[3, 9]],
  Sample == "PM1-240", target[[3, 9]],
  Sample == "HEU-235", target[[4, 9]],
  Sample == "HEU-238", target[[5, 9]],
  Sample == "Pu-239", target[[6, 9]],
  Sample == "Pu-240", target[[7, 9]],
  Sample == "U-235", target[[8, 9]],
  Sample == "U-238", target[[9, 9]],
  Sample == "INT-DU-235", target[[10, 9]],
  Sample == "INT-DU-238", target[[11, 9]],
  Sample == "BNC-Pu-239", target[[12, 9]],
  Sample == "BNC-Pu-240", target[[13, 9]],
  Sample == "ITU-PuO2-239", target[[14, 9]],
  Sample == "ITU-PuO2-240", target[[15, 9]],
  Sample == "ITU-Pu5-239", target[[16, 9]],
  Sample == "ITU-Pu5-240", target[[17, 9]],
  Sample == "ITU-Pu20-239", target[[18, 9]],
  Sample == "ITU-Pu20-240", target[[19, 9]],
  Sample == "ITU-UO2-235", target[[20, 9]],
  Sample == "ITU-UO2-238", target[[21, 9]],
  Sample == "ITU-metU-235", target[[22, 9]],
  Sample == "ITU-metU-238", target[[23, 9]],
  Sample == "ITU-U3O8-235", target[[24, 9]],
  Sample == "ITU-U3O8-238", target[[25, 9]]]
```

```
Out[269]= 0.01 cm2
```

```
In[270]:= TargetDepth = Which[
  (* target depth - automatically assigned *)
  Sample == "PM1-239", target[[3, 10]],
  Sample == "PM1-240", target[[3, 10]],
  Sample == "HEU-235", target[[4, 10]],
  Sample == "HEU-238", target[[5, 10]],
  Sample == "Pu-239", target[[6, 10]],
  Sample == "Pu-240", target[[7, 10]],
  Sample == "U-235", target[[8, 10]],
  Sample == "U-238", target[[9, 10]],
  Sample == "INT-DU-235", target[[10, 10]],
  Sample == "INT-DU-238", target[[11, 10]],
  Sample == "BNC-Pu-239", target[[12, 10]],
  Sample == "BNC-Pu-240", target[[13, 10]],
  Sample == "ITU-PuO2-239", target[[14, 10]],
  Sample == "ITU-PuO2-240", target[[15, 10]],
  Sample == "ITU-Pu5-239", target[[16, 10]],
  Sample == "ITU-Pu5-240", target[[17, 10]],
  Sample == "ITU-Pu20-239", target[[18, 10]],
  Sample == "ITU-Pu20-240", target[[19, 10]],
  Sample == "ITU-UO2-235", target[[20, 10]],
  Sample == "ITU-UO2-238", target[[21, 10]],
  Sample == "ITU-metU-235", target[[22, 10]],
  Sample == "ITU-metU-238", target[[23, 10]],
  Sample == "ITU-U3O8-235", target[[24, 10]],
  Sample == "ITU-U3O8-238", target[[25, 10]]]
```

Out[270]= 0.05 cm

```
In[271]:= ΔTargetDepth = Which[
  (* uncertainty of the target depth - automatically assigned *)
  Sample == "PM1-239", target[[3, 11]],
  Sample == "PM1-240", target[[3, 11]],
  Sample == "HEU-235", target[[4, 11]],
  Sample == "HEU-238", target[[5, 11]],
  Sample == "Pu-239", target[[6, 11]],
  Sample == "Pu-240", target[[7, 11]],
  Sample == "U-235", target[[8, 11]],
  Sample == "U-238", target[[9, 11]],
  Sample == "INT-DU-235", target[[10, 11]],
  Sample == "INT-DU-238", target[[11, 11]],
  Sample == "BNC-Pu-239", target[[12, 11]],
  Sample == "BNC-Pu-240", target[[13, 11]],
  Sample == "ITU-PuO2-239", target[[14, 11]],
  Sample == "ITU-PuO2-240", target[[15, 11]],
  Sample == "ITU-Pu5-239", target[[16, 11]],
  Sample == "ITU-Pu5-240", target[[17, 11]],
  Sample == "ITU-Pu20-239", target[[18, 11]],
  Sample == "ITU-Pu20-240", target[[19, 11]],
  Sample == "ITU-UO2-235", target[[20, 11]],
  Sample == "ITU-UO2-238", target[[21, 11]],
  Sample == "ITU-metU-235", target[[22, 11]],
  Sample == "ITU-metU-238", target[[23, 11]],
  Sample == "ITU-U3O8-235", target[[24, 11]],
  Sample == "ITU-U3O8-238", target[[25, 11]]]
```

Out[271]= 0.001 cm

■ derivations (according to selection above)

```
In[272]:= $Assumptions = {{s, cm, g, keV, MeV, mol} ∈ Reals,
  s > 0, cm > 0, g > 0, keV > 0, MeV > 0, mol > 0};
(* Define all units as real and greater zero *)
Avogadro =
  6.02214179 × 1023 / mol;
(* Avogadro Constant*)
u = g / mol /
  Avogadro;
(* unified atomic mass unit *)
NAX =
  m a / 100 / (A u)
(* # of atoms of the choosen isotope in target *)
ΔNAX = √((Δm a / 100 / (A u))2 + (m Δa / 100 / (A u))2)
Ntot =
  m a / 100 / (A u) + m a2 / 100 / (A2 u)
(* total # of atoms in target *)
```

Out[275]= 1.25461×10^{20}

Out[276]= 1.27946×10^{18}

Out[277]= 2.5192×10^{21}

In[278]=

```
(* molar mass number of the other isotope -
automatically assigned *) MolarMass = N[A a / 100 + A2 a2 / 100] g / mol
```

```
Out[278]=  $\frac{239.05 \text{ g}}{\text{mol}}$ 
```

```
In[279]= WeightDensity = Which[FMSample == "Plutonium", 19.816 g / cm3, FMSample == "Uran",
19.16 g / cm3] (* weight density - automatically assigned *)
```

```
Out[279]=  $\frac{19.816 \text{ g}}{\text{cm}^3}$ 
```

```
In[280]= ParticleDensity = Avogadro WeightDensity /
MolarMass
(* particle density - automatically assigned *)
```

```
Out[280]=  $\frac{4.99204 \times 10^{22}}{\text{cm}^3}$ 
```

```
In[281]= (* checking whether the target is completely covered by the beam *)
If[MaxArea / cm2 > TargetArea / cm2, "ok",
EmitSound[Play[Cos[50 t] Sin[4000 t], {t, 0, 1}]];
Style["TARGET TOO BIG !!", FontColor → Red, FontWeight → Bold]]
```

```
Out[281]= If[ $\frac{-}{\text{cm}^2} > 1$ , ok,
EmitSound[Play[Cos[50 t] Sin[4000 t], {t, 0, 1}]]; TARGET TOO BIG !!]
```

Intensity

Import of isotopic specific intensity

```
In[282]= IntensityPath = Which[
SampleIsotope == "Pu-239", StringJoin[#, "intensity_Pu-239.csv"],
SampleIsotope == "Pu-240", StringJoin[#, "intensity_Pu-240.csv"],
SampleIsotope == "U-235", StringJoin[#, "intensity_U-235.csv"],
SampleIsotope == "U-238", StringJoin[#, "intensity_U-238.csv"]] & [
NotebookDirectory[]]
```

```
Out[282]= Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik Postelt\sp
n,gamma\Mathematica\estimate\intensity_Pu-240.csv
```

```
In[283]:= IntensityFull = Import[IntensityPath, "Table", "FieldSeparators" → ";"];
IntensityTable = Drop[IntensityFull, 3];
TableForm[IntensityTable,
  TableHeadings → {None, {"Energy/eV", "uncertainty/eV",
    "Intensity/nc-1", "uncertainty/nc-1", "rel. uncertainty"}}}]
```

Out[285]/TableForm=

Energy/eV	uncertainty/eV	Intensity/n _c ⁻¹	uncertainty/n _c ⁻¹	rel. uncertainty
5 079 800	20	0.0276049	0.00144449	0.052327
5 071 800	1000	0.00580074	0.00240735	0.415008
4 486 190	190	0.00479281	0.000495874	0.103462
4 472 290	40	0.0370054	0.00304512	0.0822885
4 457 420	30	0.0234087	0.00133601	0.0570733
4 441 120	90	0.00530706	0.000312835	0.058947
4 399 540	100	0.0212077	0.00153608	0.0724305
4 390 970	30	0.054202	0.000843213	0.0155569
4 301 250	50	0.0270084	0.00301468	0.11162
4 298 950	60	0.0249926	0.00301304	0.120557
4 276 610	20	0.0609901	0.00312177	0.0511849
4 245 840	40	0.0239023	0.00143823	0.0601711
4 232 040	50	0.0164971	0.00102061	0.0618661
4 151 530	20	0.0660091	0.00313141	0.047439
4 017 800	60	0.0319041	0.00234502	0.0735021
3 987 740	20	0.0639933	0.00312745	0.0488715
3 972 680	50	0.00540991	0.000313001	0.057857
3 944 810	40	0.126999	0.00722354	0.0568786
3 925 300	100	0.00900966	0.000602928	0.0669202
3 889 940	200	0.0190067	0.00401541	0.211263
3 883 890	40	0.130002	0.00722859	0.0556035
3 878 710	80	0.0212077	0.00143423	0.0676279
3 769 460	120	0.00580074	0.00119439	0.205903
3 763 360	130	0.00580074	0.000496891	0.0856599
3 740 220	210	0.00639727	0.000804638	0.125778
3 736 330	190	0.0074052	0.000805455	0.108769
3 727 570	100	0.0148927	0.00112018	0.0752167
3 717 810	50	0.0470025	0.00307847	0.0654959
3 710 630	200	0.0190067	0.00500193	0.263167
3 630 520	30	0.0240052	0.00601097	0.250403

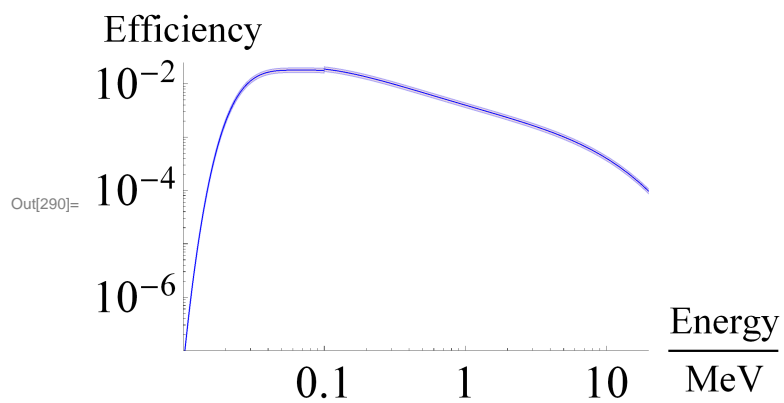
Efficiency definition

Definition of an efficiency calibration curve for a point source in 10 cm distance of a HPGe Detector (50% NaI) as proposed by Helmut Fischer, University of Bremen


```

In[286]:= loglow[x_] = -2.947 * 10^2 + 2.737 * 10^2 Log[x / 1000] - 9.667 * 10 * Log[x / 1000]^2 +
  1.518 * 10 * Log[x / 1000]^3 - 8.942 * 10^(-1) * Log[x / 1000]^4;
loghigh[x_] = -2.850 * 10 + 1.626 * 10 * Log[x / 1000] - 3.830 Log[x / 1000]^2 +
  3.817 * 10^(-1) * Log[x / 1000]^3 - 1.423 * 10^(-2) Log[x / 1000]^4;
Efficiency[Energy_] = Piecewise[{{E^loglow[Energy], Energy <= 10^5},
  {E^loghigh[Energy], Energy > 10^5}}];
(* where the Energy is given in keV *)
ΔEfficiency[Energy_] = 0.1 Efficiency[Energy];
(* 10% relative unvertainty for the efficiency *)
LogLogPlot[{Efficiency[10^6 x], Efficiency[10^6 x] + ΔEfficiency[10^6 x],
  Efficiency[10^6 x] - ΔEfficiency[10^6 x]}, {x, 10^-2, 20},
  PlotRange -> {{10^-2, 20}, {10^-7, 2.5 * 10^-2}}, Filling -> {2 -> {3}}, AxesLabel ->
  {Style[Energy / MeV, FontSize -> 20], Style["Efficiency", FontSize -> 20]},
  PlotStyle -> {Blue, {Blue, Opacity[0.3]}, {Blue, Opacity[0.3]}},
  TicksStyle -> Large,
  Ticks -> {{{0.01, "", {0.01, 0}}, {0.02, "", {0.005, 0}}, {0.03, "", {0.005, 0}},
    {0.04, "", {0.005, 0}}, {0.05, "", {0.005, 0}}, {0.06, "", {0.005, 0}},
    {0.07, "", {0.005, 0}}, {0.08, "", {0.005, 0}}, {0.09, "", {0.005, 0}},
    {0.1, "0.1", {0.01, 0}}, {0.2, "", {0.005, 0}}, {0.3, "", {0.005, 0}},
    {0.4, "", {0.005, 0}}, {0.5, "", {0.005, 0}}, {0.6, "", {0.005, 0}},
    {0.7, "", {0.005, 0}}, {0.8, "", {0.005, 0}}, {0.9, "", {0.005, 0}},
    {1., 1, {0.01, 0}}, {2, "", {0.005, 0}}, {3, "", {0.005, 0}},
    {4, "", {0.005, 0}}, {5, "", {0.005, 0}}, {6, "", {0.005, 0}},
    {7, "", {0.005, 0}}, {8, "", {0.005, 0}}, {9, "", {0.005, 0}},
    {10, 10, {0.01, 0}}, {{10^-7, "", {0.01, 0}}, {2 * 10^-7, "", {0.005, 0}},
    {3 * 10^-7, "", {0.005, 0}}, {4 * 10^-7, "", {0.005, 0}}, {5 * 10^-7, "", {0.005, 0}},
    {6 * 10^-7, "", {0.005, 0}}, {7 * 10^-7, "", {0.005, 0}}, {8 * 10^-7, "", {0.005, 0}},
    {9 * 10^-7, "", {0.005, 0}}, {10^-6, "10^-6", {0.01, 0}}, {2 * 10^-6, "", {0.005, 0}},
    {3 * 10^-6, "", {0.005, 0}}, {4 * 10^-6, "", {0.005, 0}}, {5 * 10^-6, "", {0.005, 0}},
    {6 * 10^-6, "", {0.005, 0}}, {7 * 10^-6, "", {0.005, 0}}, {8 * 10^-6, "", {0.005, 0}},
    {9 * 10^-6, "", {0.005, 0}}, {10^-5, "", {0.01, 0}}, {2 * 10^-5, "", {0.005, 0}},
    {3 * 10^-5, "", {0.005, 0}}, {4 * 10^-5, "", {0.005, 0}}, {5 * 10^-5, "", {0.005, 0}},
    {6 * 10^-5, "", {0.005, 0}}, {7 * 10^-5, "", {0.005, 0}}, {8 * 10^-5, "", {0.005, 0}},
    {9 * 10^-5, "", {0.005, 0}}, {10^-4, "10^-4", {0.01, 0}}, {2 * 10^-4, "", {0.005, 0}},
    {3 * 10^-4, "", {0.005, 0}}, {4 * 10^-4, "", {0.005, 0}}, {5 * 10^-4, "", {0.005, 0}},
    {6 * 10^-4, "", {0.005, 0}}, {7 * 10^-4, "", {0.005, 0}}, {8 * 10^-4, "", {0.005, 0}},
    {9 * 10^-4, "", {0.005, 0}}, {10^-3, "", {0.01, 0}}, {2 * 10^-3, "", {0.005, 0}},
    {3 * 10^-3, "", {0.005, 0}}, {4 * 10^-3, "", {0.005, 0}}, {5 * 10^-3, "", {0.005, 0}},
    {6 * 10^-3, "", {0.005, 0}}, {7 * 10^-3, "", {0.005, 0}}, {8 * 10^-3, "", {0.005, 0}},
    {9 * 10^-3, "", {0.005, 0}}, {10^-2, "10^-2", {0.01, 0}}}}]}

```



Efficiency corrected intensity

The given intensities are folded with the defined efficiency calibration curve.

The new table is ordered by 'Intensity*Efficiency' to facilitate the identification of the strongest γ -lines. '#' refers to the actual order.

```

In[291]:= IntensityEfficiency = Table[{IntensityTable[[i, 1]], IntensityTable[[i, 2]],
  IntensityTable[[i, 3]] * Efficiency[IntensityTable[[i, 1]]],
  Sqrt(((IntensityTable[[i, 3]] * ΔEfficiency[IntensityTable[[i, 1]]) ^ 2 +
    (IntensityTable[[i, 4]] * Efficiency[IntensityTable[[i, 1]]) ^ 2),
  i}], {i, 1, Length[IntensityTable]};
TableForm[SortBy[IntensityEfficiency, -N#[[4]] &],
  TableHeadings → {None, {"Energy/eV", "uncertainty/eV",
  "Intensity*Efficiency/nc-1", "uncertainty/nc-1", "#"}}]

```

Out[292]/TableForm=

Energy/eV	uncertainty/eV	Intensity*Efficiency/n _c ⁻¹	uncertainty/n _c ⁻¹	#
3 883 890	40	0.000170186	0.0000194726	21
3 944 810	40	0.000163772	0.000018841	18
3 987 740	20	0.0000816586	9.08887 × 10 ⁻⁶	16
3 630 520	30	0.0000335071	9.03461 × 10 ⁻⁶	30
4 151 530	20	0.0000809636	8.9612 × 10 ⁻⁶	14
4 276 610	20	0.000072624	8.15846 × 10 ⁻⁶	11
3 717 810	50	0.0000641543	7.66898 × 10 ⁻⁶	28
3 710 630	200	0.00002599	7.31685 × 10 ⁻⁶	29
4 390 970	30	0.0000628428	6.35987 × 10 ⁻⁶	8
3 889 940	200	0.0000248444	5.80699 × 10 ⁻⁶	20
4 472 290	40	0.0000421086	5.45325 × 10 ⁻⁶	4
4 017 800	60	0.0000404139	5.01565 × 10 ⁻⁶	15
4 301 250	50	0.000031975	4.79189 × 10 ⁻⁶	9
4 298 950	60	0.0000296044	4.63704 × 10 ⁻⁶	10
3 878 710	80	0.0000277987	3.35589 × 10 ⁻⁶	22
4 245 840	40	0.0000286686	3.34583 × 10 ⁻⁶	12
5 079 800	20	0.0000274553	3.09869 × 10 ⁻⁶	1
4 457 420	30	0.0000267278	3.07746 × 10 ⁻⁶	5
4 399 540	100	0.0000245399	3.03007 × 10 ⁻⁶	7
3 727 570	100	0.0000202768	2.53724 × 10 ⁻⁶	27
5 071 800	1000	5.77921 × 10 ⁻⁶	2.46706 × 10 ⁻⁶	2
4 232 040	50	0.0000198513	2.33432 × 10 ⁻⁶	13
3 769 460	120	7.81446 × 10 ⁻⁶	1.78875 × 10 ⁻⁶	23
3 736 330	190	0.00001006	1.48638 × 10 ⁻⁶	26
3 925 300	100	0.0000116744	1.40473 × 10 ⁻⁶	19
3 740 220	210	8.68211 × 10 ⁻⁶	1.3951 × 10 ⁻⁶	25
3 763 360	130	7.82651 × 10 ⁻⁶	1.03054 × 10 ⁻⁶	24
3 972 680	50	6.92879 × 10 ⁻⁶	8.00491 × 10 ⁻⁷	17
4 486 190	190	5.43642 × 10 ⁻⁶	7.82248 × 10 ⁻⁷	3
4 441 120	90	6.0823 × 10 ⁻⁶	7.06038 × 10 ⁻⁷	6

CaptureCrossSections

The cross section in ENDF-B-7.1 are not continuous, but pointwise. For our calculations it's easier to have a continuously defined cross section. Thus we approximate the cross section $\sigma(E_1)$ for an energy E_1 by the closest value E_2 , and it's corresponding cross section $\sigma(E_2)$. Though especially in

the resonance error this will not be correct, the error introduced in the final calculation should be low.

```
In[293]:= DiscreteCaptureCrossSectionPu239 =
  Drop[Import[StringJoin[NotebookDirectory[], "crosssection_Pu-239.csv"],
    "Table", "FieldSeparators" -> ";"], 3];
TableForm[DiscreteCaptureCrossSectionPu239[{{1, 2, 111}}], TableHeadings ->
  {None, {"Incident Energy/eV", "Crosssection/b", "Std. deviation/b"}}]
CaptureCrossSectionPu239 = Interpolation[
  DiscreteCaptureCrossSectionPu239[[All, {1, 2}]], InterpolationOrder -> 0];
(* Nearest listed energy of the cross-sections table to a given value -
  step function *)
ΔCaptureCrossSectionPu239 = Interpolation[1.05
  DiscreteCaptureCrossSectionPu239[[All, {1, 3}]], InterpolationOrder -> 0];
(* 5% error added to approximate error due to the use of nearest
  function -- here one could define a different error
  added to the resonance region and elsewhere. This
  would have to be done isotopespecific. *)
CaptureCrossSectionPu239[0.0253]
ΔCaptureCrossSectionPu239[0.0253] / 1.05
```

Out[294]/TableForm=

Incident Energy/eV	Crosssection/b	Std. deviation/b
0.00001	11 757.9	245.908
0.000010625	11 406.9	238.567
0.0253	270.702	4.58296

Out[297]= 270.702

Out[298]= 4.58296

```
In[299]:= DiscreteCaptureCrossSectionPu240 =
  Drop[Import[StringJoin[NotebookDirectory[], "crosssection_Pu-240.csv"],
    "Table", "FieldSeparators" -> ";"], 3];
CaptureCrossSectionPu240 = Interpolation[
  DiscreteCaptureCrossSectionPu240[[All, {1, 2}]], InterpolationOrder -> 0];
ΔCaptureCrossSectionPu240 = Interpolation[
  1.05 DiscreteCaptureCrossSectionPu240[[All, {1, 3}]], InterpolationOrder -> 0];
```

```
In[302]:= DiscreteCaptureCrossSectionU235 =
  Drop[Import[StringJoin[NotebookDirectory[], "crosssection_U-235.csv"],
    "Table", "FieldSeparators" -> ";"], 3];
CaptureCrossSectionU235 = Interpolation[
  DiscreteCaptureCrossSectionU235[[All, {1, 2}]], InterpolationOrder -> 0];
ΔCaptureCrossSectionU235 = Interpolation[
  1.05 DiscreteCaptureCrossSectionU235[[All, {1, 3}]], InterpolationOrder -> 0];
```

```
In[305]:= DiscreteCaptureCrossSectionU238 =
  Drop[Import[StringJoin[NotebookDirectory[], "crosssection_U-238.csv"],
    "Table", "FieldSeparators" -> ";"], 3];
CaptureCrossSectionU238 = Interpolation[
  DiscreteCaptureCrossSectionU238[[All, {1, 2}]], InterpolationOrder -> 0];
ΔCaptureCrossSectionU238 = Interpolation[
  1.05 DiscreteCaptureCrossSectionU238[[All, {1, 3}]], InterpolationOrder -> 0];
```

```

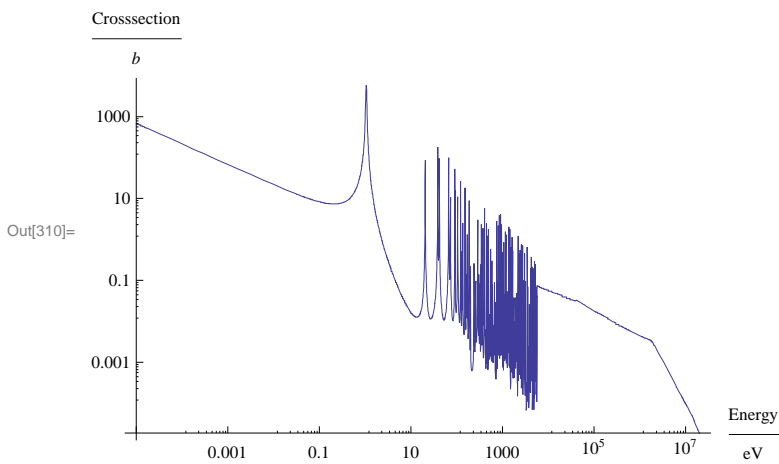
In[308]:= CaptureCrossSection = Which[
  SampleIsotope == "Pu-239", CaptureCrossSectionPu239,
  SampleIsotope == "Pu-240", CaptureCrossSectionPu240,
  SampleIsotope == "U-235", CaptureCrossSectionU235,
  SampleIsotope == "U-238", CaptureCrossSectionU238]
ΔCaptureCrossSection = Which[
  SampleIsotope == "Pu-239", ΔCaptureCrossSectionPu239,
  SampleIsotope == "Pu-240", ΔCaptureCrossSectionPu240,
  SampleIsotope == "U-235", ΔCaptureCrossSectionU235,
  SampleIsotope == "U-238", ΔCaptureCrossSectionU238]

Out[308]= InterpolatingFunction[{{0.00001, 3. × 107}}, <>]

Out[309]= InterpolatingFunction[{{0.0000105, 3.15 × 107}}, <>]

In[310]:= LogLogPlot[CaptureCrossSection[x] a / 100, {x, 10-5, 2 × 107},
  PlotRange → Full, AxesLabel → {Energy / eV, Crosssection / b}]
(* Graph of the cross sections where the missing energy
  data points are approximated by their nearest neighbor.*)

```



Fixed neutron flux

Fixed neutron flux according to chosen source.

```
In[311]= FluxFix = TargetArea / cm2 Which[
  NeutronSource == "FRMII cold", source[[2, 2]],
  NeutronSource == "FRMII thermal", source[[3, 2]],
  NeutronSource == "Budapest cont", source[[4, 2]],
  NeutronSource == "Budapest thermal", source[[5, 2]],
  NeutronSource == "FR2-Bi", source[[6, 2]],
  NeutronSource == "FR2-Sc", source[[7, 2]],
  NeutronSource == "DD", source[[8, 2]],
  NeutronSource == "DT", source[[9, 2]],
  NeutronSource == "TT", source[[10, 2]],
  NeutronSource == "Cf-252", source[[11, 2]],
  NeutronSource == "1 Ci AmBe", source[[12, 2]],
  NeutronSource == "DD therm factor", source[[13, 2]] source[[8, 2]],
  NeutronSource == "10 Ci AmBe", source[[14, 2]],
  NeutronSource == "AmBe therm factor", source[[15, 2]] source[[14, 2]],
  NeutronSource == "DT therm factor", source[[16, 2]] source[[9, 2]],
  NeutronSource == "DD INT factor", source[[17, 2]],
  NeutronSource == "DT INT factor", source[[18, 2]],
  NeutronSource == "AmBe ITU factor", source[[19, 2]]
]
Out[311]=  $\frac{4473.23}{\text{cm}^2 \text{ s}}$ 
```

```
In[312]= ΔFluxFix = 0.01 FluxFix (* arbitrary *)
```

```
Out[312]=  $\frac{44.7323}{\text{cm}^2 \text{ s}}$ 
```

■ Fixed crosssection

Fixed crosssection @ E = EnergyFix eV (according to choosen source).

```
In[313]= EnergyFix = Which[
  NeutronSource == "FRMII cold", source[[2, 4]],
  NeutronSource == "FRMII thermal", source[[3, 4]],
  NeutronSource == "Budapest cont", source[[4, 4]],
  NeutronSource == "Budapest thermal", source[[5, 4]],
  NeutronSource == "FR2-Bi", source[[6, 4]],
  NeutronSource == "FR2-Sc", source[[7, 4]],
  NeutronSource == "DD", source[[8, 4]],
  NeutronSource == "DT", source[[9, 4]],
  NeutronSource == "TT", source[[10, 4]],
  NeutronSource == "Cf-252", source[[11, 4]],
  NeutronSource == "1 Ci AmBe", source[[12, 4]],
  NeutronSource == "DD therm factor", source[[13, 4]],
  NeutronSource == "10 Ci AmBe", source[[14, 4]],
  NeutronSource == "AmBe therm factor", source[[15, 4]],
  NeutronSource == "DT therm factor", source[[16, 4]],
  NeutronSource == "DD INT factor", source[[17, 4]],
  NeutronSource == "DT INT factor", source[[18, 4]],
  NeutronSource == "AmBe ITU factor", source[[19, 4]]
]
Out[313]= 0.025 eV
```

```
In[314]:= CrossFix = If[NeutronSource == "0.025 eV",
  WestcottGamma CaptureCrossSection[EnergyFix / eV] 10-24 cm2,
  CaptureCrossSection[EnergyFix / eV] 10-24 cm2]
ΔCrossFix = If[NeutronSource == "0.025 eV",
  WestcottGamma ΔCaptureCrossSection[EnergyFix / eV] 10-24 cm2,
  ΔCaptureCrossSection[EnergyFix / eV] 10-24 cm2]
```

```
Out[314]= 2.87546 × 10-22 cm2
```

```
Out[315]= 2.75333 × 10-24 cm2
```

■ Fixed intensity-efficiency

Strongest “measured” gamma line (/efficiency weighted intensity) according to choosen sample.

```
In[316]:= Iefix = Max[IntensityEfficiency[[All, 3]]]
ΔIefix = Pick[IntensityEfficiency[[All, 4]],
  IntensityEfficiency[[All, 3]], Max[IntensityEfficiency[[All, 3]]]]
```

```
Out[316]= 0.000170186
```

```
Out[317]= {0.0000194726}
```

Continuous neutron flux

The continuous neutron flux is approximated.

```
In[318]:= NeutronFluxPath = Which[
  NeutronSource == "FRMII cold", StringJoin[#, "FRM2Cold_Petry2003.txt"],
  NeutronSource == "FRMII thermal", StringJoin[#, "FRM2Cold_Petry2003.txt"],
  NeutronSource == "Budapest cont",
  StringJoin[#, "BudapestCold_Revay2004.txt"],
  NeutronSource == "Budapest thermal",
  StringJoin[#, "BudapestCold_Revay2004.txt"],
  NeutronSource == "FR2-Bi", "not available",
  NeutronSource == "FR2-Sc", "not available",
  NeutronSource == "DD", StringJoin[#, "DD_Fantidis2012.txt"],
  NeutronSource == "DT", StringJoin[#, "DT_Fantidis2012.txt"],
  NeutronSource == "TT", StringJoin[#, "TT_Fantidis2012.txt"],
  NeutronSource == "Cf-252", StringJoin[#, "CF252_Miller2012.txt"],
  NeutronSource == "1 Ci AmBe", StringJoin[#, "AmBe_Guarrini1971.txt"],
  NeutronSource == "DD therm factor", "not available",
  NeutronSource == "10 Ci AmBe", StringJoin[#, "DD_therm_cont.txt"],
  NeutronSource == "AmBe therm factor", "not available",
  NeutronSource == "DT therm factor", "not available",
  NeutronSource == "DD INT factor", "not available",
  NeutronSource == "DT INT factor", "not available",
  NeutronSource == "AmBe ITU factor", "not available"
] &[NotebookDirectory[]]
```

```
Out[318]= not available
```

```
In[319]:= NeutronFluxTableFull :=
  Import[ToString[NeutronFluxPath /. Dynamic → Identity], "Data"]
```

```
In[320]:= TableForm[NeutronFluxTableFull]
```

```
Import::nffil : File not found during Import. >>
```

```
Out[320]/TableForm=
```

```
$Failed
```

```
In[321]:= NeutronFluxTable = Drop[NeutronFluxTableFull, 4];
```

```
Import::nffil : File not found during Import. >>
```

```
Drop::normal : Nonatomic expression expected at position 1 in Drop[$Failed, 4]. >>
```

```
In[322]:= NeutronFluxInterpolationWithoutCuts =
```

```
Interpolation[NeutronFluxTable, InterpolationOrder -> 1];
```

$$\text{NeutronFluxInterpolation}[\mathbf{x}_-] = \begin{cases} \text{NeutronFluxInterpolationWithoutCuts}[\mathbf{x}] & \text{Min[Neut} \\ \mathbf{x} & \text{Max[Neut} \\ 0 & \text{True (*"=}$$

```
(*Takes the interpolationFunction if inside its Domain,  
otherwise the Flux is set zero*)
```

```
Interpolation::innd : First argument in Drop[$Failed, 4] does not contain a list of data and coordinates. >>
```

```
Part::partd : Part specification Drop[$Failed, 4][All, 1] is longer than depth of object. >>
```

```
Part::partd : Part specification Drop[$Failed, 4][All, 1] is longer than depth of object. >>
```



```
In[324]:= Plot2 = LogLogPlot[NeutronFluxInterpolation[x],
  {x, Min[NeutronFluxTable[[All, 1]]] + 10^-10
    (* to ensure a value greater than zero in Log-Plot *) ,
    Max[NeutronFluxTable[[All, 1]]]}, PlotStyle -> Orange,
  PlotRange -> All, AxesLabel -> {"En" / "eV", "φ" / "units as in table"}];
(* for Budapest and FRM2 flux in /cm^2 /s /eV. Else in arb. units *)
Show[Plot2, ListLogLogPlot[NeutronFluxTable]]
```

Part::partd : Part specification Drop[\$Failed, 4][[All, 1]] is longer than depth of object. >>

Part::partd : Part specification Drop[\$Failed, 4][[All, 1]] is longer than depth of object. >>

LogLogPlot::lplim :

Range specification $\left\{x, \text{Min}[\text{NeutronFluxTable}[\text{All}, 1]] + \frac{1}{10^{10}}, \text{Max}[\text{NeutronFluxTable}[\text{All}, 1]]\right\}$ is not of the form $\{x, \text{xmin}, \text{xmax}\}$ with xmin and xmax positive. >>

LogLogPlot::lplim :

Range specification $\left\{x, \text{Min}[\text{NeutronFluxTable}[\text{All}, 1]] + \frac{1}{10^{10}}, \text{Max}[\text{NeutronFluxTable}[\text{All}, 1]]\right\}$ is not of the form $\{x, \text{xmin}, \text{xmax}\}$ with xmin and xmax positive. >>

LogLogPlot::lplim :

Range specification $\left\{x, \text{Min}[\text{NeutronFluxTable}[\text{All}, 1]] + \frac{1}{10^{10}}, \text{Max}[\text{NeutronFluxTable}[\text{All}, 1]]\right\}$ is not of the form $\{x, \text{xmin}, \text{xmax}\}$ with xmin and xmax positive. >>

General::stop : Further output of LogLogPlot::lplim will be suppressed during this calculation. >>

ListLogLogPlot::lpln : Drop[\$Failed, 4] is not a list of numbers or pairs of numbers. >>

Show::gcomb : Could not combine the graphics objects in

Show[LogLogPlot[NeutronFluxInterpolation[x], $\left\{x, \text{Min}[\text{NeutronFluxTable}[\text{All}, 1]] + \frac{1}{10^{10}}, \text{Max}[\text{NeutronFluxTable}[\text{All}, 1]]\right\}$], PlotStyle -> Orange, PlotRange -> All, AxesLabel -> $\left\{\frac{E_n}{\text{eV}}, \frac{\phi}{\text{units as in table}}\right\}$], ListLogLogPlot[Drop[\$Failed, 4]]]. >>

```
Out[325]= Show[LogLogPlot[NeutronFluxInterpolation[x],
  {x, Min[NeutronFluxTable[[All, 1]]] + 1/10^10, Max[NeutronFluxTable[[All, 1]]]},
  PlotStyle -> Orange, PlotRange -> All, AxesLabel -> {En/eV, φ/units as in table}],
  ListLogLogPlot[Drop[$Failed, 4]]]
```

This is the spectral flux for the chosen source.

As the flux is given in arbitrary units for the non-reactor spectra, these are normalized and then multiplied by the fixed flux of the according source:

```
In[326]:= NeutronFluxIntegrated =
  N[Integrate[NeutronFluxInterpolation[x], {x, 0, Infinity}]]
```

Out[326]= 0.

```
In[327]:= NeutronFluxNormalized = Function[x, NeutronFluxInterpolation[x] / NeutronFluxIntegrated];
```

```

In[328]= NeutronFlux = Which[
  NeutronSource == "FRMII cold",
  Function[x, NeutronFluxInterpolation[x] TargetArea / cm2 / cm2 / s / eV],
  NeutronSource == "FRMII thermal",
  Function[x, NeutronFluxInterpolation[x] TargetArea / cm2 / cm2 / s / eV],
  NeutronSource == "Budapest cont",
  Function[x, NeutronFluxInterpolation[x] TargetArea / cm2 / cm2 / s / eV],
  NeutronSource == "Budapest thermal",
  Function[x, NeutronFluxInterpolation[x] TargetArea / cm2 / cm2 / s / eV],
  NeutronSource == "FR2-Bi", Function[x, 0 TargetArea / cm2 / cm2 / s /
    eV], (* not available *)
  NeutronSource == "FR2-Sc", Function[x, 0 TargetArea / cm2 / cm2 / s /
    eV],
  (* not available *)
  NeutronSource == "DD", Function[x,
    NeutronFluxNormalized[x] TargetArea / cm2 / eV * FluxFix],
  NeutronSource == "DT", Function[x,
    NeutronFluxNormalized[x] TargetArea / cm2 / eV * FluxFix],
  NeutronSource == "TT", Function[x,
    NeutronFluxNormalized[x] TargetArea / cm2 / eV * FluxFix],
  NeutronSource == "Cf-252", Function[x,
    NeutronFluxNormalized[x] TargetArea / cm2 / eV * FluxFix ],
  NeutronSource == "1 Ci AmBe", Function[x,
    NeutronFluxNormalized[x] TargetArea / cm2 / eV * FluxFix],
  NeutronSource == "DD therm factor", Function[x,
    0 TargetArea / cm2 / cm2 / s / eV],
  (* not available *)
  NeutronSource == "10 Ci AmBe",
  Function[x, NeutronFluxNormalized[x] TargetArea / cm2 / eV * FluxFix],
  NeutronSource == "AmBe therm factor", Function[x,
    0 TargetArea / cm2 / cm2 / s / eV],
  (* not available *)
  NeutronSource == "DT therm factor", Function[x,
    0 TargetArea / cm2 / cm2 / s / eV],
  (* not available *)
  NeutronSource == "DD INT factor", Function[x, 0 TargetArea / cm2 / cm2 / s / eV],
  NeutronSource == "DT INT factor", Function[x, 0 TargetArea / cm2 / cm2 / s / eV],
  NeutronSource == "AmBe ITU factor", Function[x, 0 TargetArea / cm2 / cm2 / s / eV]
]

```

```

Out[328]= Function[x,  $\frac{0 \text{ TargetArea}}{((\text{cm}^2 \text{ cm}^2) \text{ s}) \text{ eV}}$ ]

```

```
In[329]=  $\phi_{\text{cont}} = \text{NIntegrate}[(\text{NeutronFlux}[\mathbf{x}] \text{ eV s cm}^2), \{\mathbf{x}, 0, \text{Infinity}\}] / \text{s} / \text{cm}^2$ 
FluxFix (* to facilitate comparison *)
```

NIntegrate::izero :

Integral and error estimates are 0 on all integration subregions. Try increasing the value of the MinRecursion option. If value of integral may be 0, specify a finite value for the AccuracyGoal option. >>

```
Out[329]= 0.
```

```
Out[330]=  $\frac{4473.23}{\text{cm}^2 \text{ s}}$ 
```

Apparently total reactor fluxes are underestimated due to incomplete neutron flux spectra (cut at a certain neutron energy). Therefore it is advised to use the thermal equivalent fixed neutron fluxes FluxFix.

In the case of the Budapest reactor, in addition, **only the Diff. neutron flux** is available so far.

■ relative uncertainty

```
In[331]=  $\Delta\text{NeutronFluxRelative} = \text{Which}[$ 
  NeutronSource == "FRMII cold", source[[2, 7]],
  NeutronSource == "FRMII thermal", source[[3, 7]],
  NeutronSource == "Budapest cont", source[[4, 7]],
  NeutronSource == "Budapest thermal", source[[5, 7]],
  NeutronSource == "FR2-Bi", source[[6, 7]],
  NeutronSource == "FR2-Sc", source[[7, 7]],
  NeutronSource == "DD", source[[8, 7]],
  NeutronSource == "DT", source[[9, 7]],
  NeutronSource == "TT", source[[10, 7]],
  NeutronSource == "Cf-252", source[[11, 7]],
  NeutronSource == "1 Ci AmBe", source[[12, 7]],
  NeutronSource == "DD therm factor", source[[13, 7]],
  NeutronSource == "10 Ci AmBe", source[[14, 7]],
  NeutronSource == "AmBe therm factor", source[[15, 7]],
  NeutronSource == "DT therm factor", source[[16, 7]],
  NeutronSource == "DD INT factor", source[[17, 7]],
  NeutronSource == "DT INT factor", source[[18, 7]],
  NeutronSource == "AmBe ITU factor", source[[19, 7]]
]
(* relative uncertainty for the neutron source. The large errors are
  mostly due to rough approximations in the interpolating function. Only
  linear interpolation between a few datapoint are considered here! *)
```

```
Out[331]= 0.3
```

```
In[332]=  $\Delta\phi_{\text{cont}} = \phi_{\text{cont}} \Delta\text{NeutronFluxRelative}$ 
```

```
Out[332]= 0.
```

Total crosssections

The cross section in ENDF-B-7.1 are not continuous, but pointwise. For our calculations it's easier to have a continuously defined cross section. Thus we approximate the cross section $\sigma(E_1)$ for an energy E_1 by the closest value E_2 , and it's corresponding cross section $\sigma(E_2)$. Though especially in

the resonance error this will not be correct, the error introduced in the final calculation should be low.

```
In[333]:= DiscreteTotalCrossSectionPu239 =
  Drop[Import[StringJoin[NotebookDirectory[], "total-cross_Pu-239.csv"],
    "Table", "FieldSeparators" -> ";"], 3];
TableForm[DiscreteTotalCrossSectionPu239[{{1, 2, 111}}], TableHeadings ->
  {None, {"Incident Energy/eV", "Crossection/b", "Std. deviation/b"}}]
TotalCrossSectionPu239 = Interpolation[
  DiscreteTotalCrossSectionPu239[All, {1, 2}], InterpolationOrder -> 0];
(* Nearest listed energy of the cross-sections table to a given value -
  step function *)
ΔTotalCrossSectionPu239 = Interpolation[
  1.05 DiscreteTotalCrossSectionPu239[All, {1, 3}], InterpolationOrder -> 0];
(* 5% error added to approximate error due to the use of nearest
  function -- here one could define a different error added to the resonance
  region and elsewhere. This would have to be done isotopespecific. *)
TotalCrossSectionPu239[0.0253]
ΔTotalCrossSectionPu239[0.0253] / 1.05
```

```
Out[334]/TableForm=
Incident Energy/eV   Crossection/b   Std. deviation/b
-----
0.00001             48 331.8       428.555
0.000010625        46 888.9       415.76
0.0253              1026.53       7.79867
```

```
Out[337]= 1026.53
```

```
Out[338]= 7.79867
```

```
In[339]:= DiscreteTotalCrossSectionPu240 =
  Drop[Import[StringJoin[NotebookDirectory[], "total-cross_Pu-240.csv"],
    "Table", "FieldSeparators" -> ";"], 3];
TotalCrossSectionPu240 = Interpolation[
  DiscreteTotalCrossSectionPu240[All, {1, 2}], InterpolationOrder -> 0];
ΔTotalCrossSectionPu240 = Interpolation[
  1.05 DiscreteTotalCrossSectionPu240[All, {1, 3}], InterpolationOrder -> 0];
```

```
In[342]:= DiscreteTotalCrossSectionU235 =
  Drop[Import[StringJoin[NotebookDirectory[], "total-cross_U-235.csv"],
    "Table", "FieldSeparators" -> ";"], 3];
TotalCrossSectionU235 = Interpolation[DiscreteTotalCrossSectionU235[
  All, {1, 2}], InterpolationOrder -> 0];
ΔTotalCrossSectionU235 = Interpolation[
  1.05 DiscreteTotalCrossSectionU235[All, {1, 3}], InterpolationOrder -> 0];
```

```
In[345]:= DiscreteTotalCrossSectionU238 =
  Drop[Import[StringJoin[NotebookDirectory[], "total-cross_U-238.csv"],
    "Table", "FieldSeparators" -> ";"], 3];
TotalCrossSectionU238 = Interpolation[DiscreteTotalCrossSectionU238[
  All, {1, 2}], InterpolationOrder -> 0];
ΔTotalCrossSectionU238 = Interpolation[
  1.05 DiscreteTotalCrossSectionU238[All, {1, 3}], InterpolationOrder -> 0];
```

```
In[348]:= TotalCrossSection1 = Which[
  SampleIsotope == "Pu-239", TotalCrossSectionPu239,
  SampleIsotope == "Pu-240", TotalCrossSectionPu240,
  SampleIsotope == "U-235", TotalCrossSectionU235,
  SampleIsotope == "U-238", TotalCrossSectionU238]
ΔTotalCrossSection1 = Which[
  SampleIsotope == "Pu-239", ΔTotalCrossSectionPu239,
  SampleIsotope == "Pu-240", ΔTotalCrossSectionPu240,
  SampleIsotope == "U-235", ΔTotalCrossSectionU235,
  SampleIsotope == "U-238", ΔTotalCrossSectionU238]
TotalCrossSection2 = Which[
  SampleIsotope == "Pu-239", TotalCrossSectionPu240,
  SampleIsotope == "Pu-240", TotalCrossSectionPu239,
  SampleIsotope == "U-235", TotalCrossSectionU238,
  SampleIsotope == "U-238", TotalCrossSectionU235]
ΔTotalCrossSection2 = Which[
  SampleIsotope == "Pu-239", ΔTotalCrossSectionPu240,
  SampleIsotope == "Pu-240", ΔTotalCrossSectionPu239,
  SampleIsotope == "U-235", ΔTotalCrossSectionU238,
  SampleIsotope == "U-238", ΔTotalCrossSectionU235]
(* TotalCrossSection[x_] =
  TotalCrossSection1[x] a/100+TotalCrossSection2[x] a2/100 *)
```

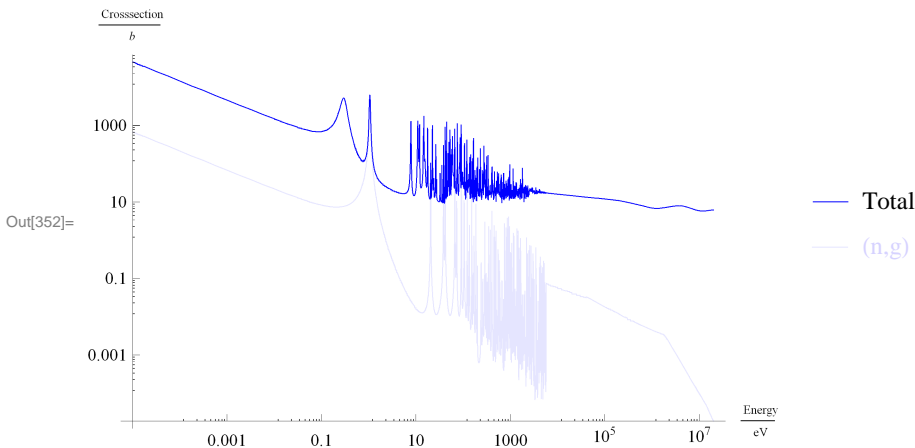
Out[348]= InterpolatingFunction[{{0.00001, 3. × 10⁷}}, <>]

Out[349]= InterpolatingFunction[{{0.0000105, 3.15 × 10⁷}}, <>]

Out[350]= InterpolatingFunction[{{0.00001, 2. × 10⁷}}, <>]

Out[351]= InterpolatingFunction[{{0.0000105, 2.1 × 10⁷}}, <>]

```
In[352]:= LogLogPlot[{TotalCrossSection1[x] a / 100 + TotalCrossSection2[x] a2 / 100,
  CaptureCrossSection[x] a / 100}, {x, 10-5, 2 × 107}, PlotRange → Full,
  PlotLegends → {"Total", "(n,g)"}, PlotStyle → {Blue, {Blue, Opacity[0.1]}},
  AxesLabel → {Energy / eV, Crosssection / b}]
```



```

In[353]:= WestcottTotal1 = Which[
    SampleIsotope == "Pu-239", WestcottTotalPu239,
    SampleIsotope == "Pu-240", WestcottTotalPu240,
    SampleIsotope == "U-235", WestcottTotalU235,
    SampleIsotope == "U-238", WestcottTotalU238];
WestcottTotal2 = Which[
    SampleIsotope == "Pu-239", WestcottTotalPu240,
    SampleIsotope == "Pu-240", WestcottTotalPu239,
    SampleIsotope == "U-235", WestcottTotalU238,
    SampleIsotope == "U-238", WestcottTotalU235];
TotalCrossFix = If[NeutronSource == "0.025 eV",
    WestcottTotal1 TotalCrossSection1[EnergyFix / eV] a / 100 +
    WestcottTotal2 TotalCrossSection2[EnergyFix / eV] a2 / 100,
    TotalCrossSection1[EnergyFix / eV] a / 100 +
    TotalCrossSection2[EnergyFix / eV] a2 / 100 ] 10-24 cm2
ΔTotalCrossFix = If[NeutronSource == "0.025 eV",
    WestcottTotal1 ΔTotalCrossSection1[EnergyFix / eV] a / 100 +
    WestcottTotal2 ΔTotalCrossSection2[EnergyFix / eV] a2 / 100 ,
    ΔTotalCrossSection1[EnergyFix / eV] a / 100 +
    ΔTotalCrossSection2[EnergyFix / eV] a2 / 100] 10-24 cm2
Out[355]= 9.89628 × 10-22 cm2
Out[356]= 8.14969 × 10-24 cm2

```

Fission background

The cross section in ENDF-B-7.1 are not continuous, but pointwise. For our calculations it's easier to have a continuously defined cross section. Thus we approximate the cross section $\sigma(E_1)$ for an energy E_1 by the closest value E_2 , and it's corresponding cross section $\sigma(E_2)$. Though especially in the resonance error this will not be correct, the error introduced in the final calculation should be low.

```
In[357]:= DiscreteFissionCrossSectionPu239 =
  Drop[Import[StringJoin[NotebookDirectory[], "fission-cross_Pu-239.csv"],
    "Table", "FieldSeparators" -> ";"], 3];
TableForm[DiscreteFissionCrossSectionPu239[{{1, 2, 111}}], TableHeadings ->
  {None, {"Incident Energy/eV", "Crosssection/b", "Std. deviation/b"}}]
FissionCrossSectionPu239 = Interpolation[
  DiscreteFissionCrossSectionPu239[[All, {1, 2}]], InterpolationOrder -> 0];
(* Nearest listed energy of the cross-sections table to a given value -
  step function *)
ΔFissionCrossSectionPu239 = Interpolation[1.05
  DiscreteFissionCrossSectionPu239[[All, {1, 3}]], InterpolationOrder -> 0];
(* 5% error added to approximate error due to the use of nearest
  function -- here one could define a different error
  added to the resonance region and elsewhere. This
  would have to be done isotopespecific. *)
FissionCrossSectionPu239[0.0253]
ΔFissionCrossSectionPu239[0.0253] / 1.05
```

Out[358]/TableForm=

Incident Energy/eV	Crosssection/b	Std. deviation/b
0.00001	36 543.1	422.404
0.0000106	35 452.	409.792
0.0253	747.834	8.52866

Out[361]= 747.834

Out[362]= 8.52866

```
In[363]:= DiscreteFissionCrossSectionPu240 =
  Drop[Import[StringJoin[NotebookDirectory[], "fission-cross_Pu-240.csv"],
    "Table", "FieldSeparators" -> ";"], 3];
FissionCrossSectionPu240 = Interpolation[
  DiscreteFissionCrossSectionPu240[[All, {1, 2}]], InterpolationOrder -> 0];
ΔFissionCrossSectionPu240 = Interpolation[
  1.05 DiscreteFissionCrossSectionPu240[[All, {1, 3}]], InterpolationOrder -> 0];
```

```
In[366]:= DiscreteFissionCrossSectionU235 =
  Drop[Import[StringJoin[NotebookDirectory[], "fission-cross_U-235.csv"],
    "Table", "FieldSeparators" -> ";"], 3];
FissionCrossSectionU235 = Interpolation[
  DiscreteFissionCrossSectionU235[[All, {1, 2}]], InterpolationOrder -> 0];
ΔFissionCrossSectionU235 = Interpolation[
  1.05 DiscreteFissionCrossSectionU235[[All, {1, 3}]], InterpolationOrder -> 0];
```

```
In[369]:= DiscreteFissionCrossSectionU238 =
  Drop[Import[StringJoin[NotebookDirectory[], "fission-cross_U-238.csv"],
    "Table", "FieldSeparators" -> ";"], 3];
FissionCrossSectionU238 = Interpolation[
  DiscreteFissionCrossSectionU238[[All, {1, 2}]], InterpolationOrder -> 0];
ΔFissionCrossSectionU238 = Interpolation[
  1.05 DiscreteFissionCrossSectionU238[[All, {1, 3}]], InterpolationOrder -> 0];
```

In[372]=

```

FissionCrossSection = Which[
  SampleIsotope == "Pu-239", FissionCrossSectionPu239,
  SampleIsotope == "Pu-240", FissionCrossSectionPu240,
  SampleIsotope == "U-235", FissionCrossSectionU235,
  SampleIsotope == "U-238", FissionCrossSectionU238]
ΔFissionCrossSection = Which[
  SampleIsotope == "Pu-239", ΔFissionCrossSectionPu239,
  SampleIsotope == "Pu-240", ΔFissionCrossSectionPu240,
  SampleIsotope == "U-235", ΔFissionCrossSectionU235,
  SampleIsotope == "U-238", ΔFissionCrossSectionU238]

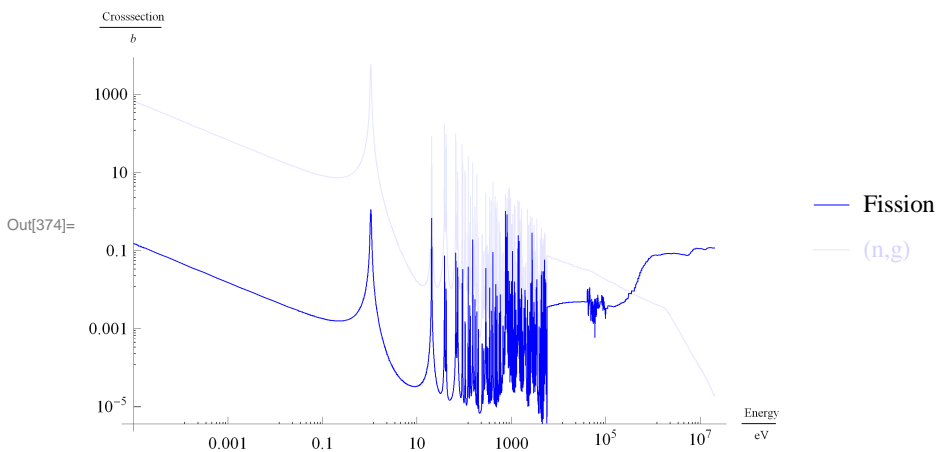
```

Out[372]= InterpolatingFunction[{{0.00001, $3. \times 10^7$ }}, <>]Out[373]= InterpolatingFunction[{{0.0000105, 3.15×10^7 }}, <>]

```

In[374]= LogLogPlot[{FissionCrossSection[x] a / 100, CaptureCrossSection[x] a / 100},
  {x,  $10^{-5}$ ,  $2 \times 10^7$ }, PlotRange → Full, PlotLegends → {"Fission", "(n,g)"},
  PlotStyle → {Blue, {Blue, Opacity[0.1]}},
  AxesLabel → {Energy / eV, Crosssection / b}]

```



```

In[375]= FissionCrossFix = If[NeutronSource == "0.025 eV",
  WestcottFission FissionCrossSection[EnergyFix / eV] ,
  FissionCrossSection[EnergyFix / eV]  $10^{-24}$  cm2
ΔFissionCrossFix = If[NeutronSource == "0.025 eV",
  WestcottFission ΔFissionCrossSection[EnergyFix / eV] ,
  ΔFissionCrossSection[EnergyFix / eV] ]  $10^{-24}$  cm2

```

Out[375]= 6.40455×10^{-26} cm²Out[376]= 3.44627×10^{-26} cm²

■ **Estimate for fission background reaction rate**


```
In[377]:= RRfissionCont =
  NIntegrate[ ((TotalCrossSection1[x] a / 100 + TotalCrossSection2[x] a2 / 100)
    10-24 cm2 ParticleDensity cm)
  E- (-(TotalCrossSection1[x] a / 100 + TotalCrossSection2[x] a2 / 100)
    10-24 cm2 ParticleDensity y cm)
  (NeutronFlux[x] eV * s TargetArea a / 100) (FissionCrossSection[x] /
    (TotalCrossSection1[x] a / 100 + TotalCrossSection2[x] a2 / 100)),
  {x, 0, Infinity}, {y, 0, TargetDepth / cm}] / s
```

NIntegrate::izero :

Integral and error estimates are 0 on all integration subregions. Try increasing the value of the MinRecursion option. If value of integral may be 0, specify a finite value for the AccuracyGoal option. >>

Out[377]= 0.

```
In[378]:= RRfissionFix = NIntegrate[ (TotalCrossFix ParticleDensity cm)
  E- (-TotalCrossFix ParticleDensity y cm), {y, 0, TargetDepth / cm}]
  FluxFix a / 100 TargetArea FissionCrossFix / TotalCrossFix
```

Out[378]= $\frac{0.0132505}{s}$

```
In[379]:= RRfissionCold = NIntegrate[
  ((TotalCrossSection1[0.000183] a / 100 + TotalCrossSection2[0.000183] a2 / 100)
    10-24 cm2 ParticleDensity cm) E- (-(TotalCrossSection1[0.000183] a / 100 +
    TotalCrossSection2[0.000183] a2 / 100) 10-24 cm2 ParticleDensity y cm),
  {y, 0, TargetDepth / cm}] FluxFix a / 100 TargetArea
  FissionCrossSection[0.000183] /
  (TotalCrossSection1[0.000183] a / 100 + TotalCrossSection2[0.000183] a2 / 100)
  (* change "Thermal/Cold" to "fix" with value from table *)
```

Out[379]= $\frac{0.0148211}{s}$

```
In[380]:= RRfission = Which[
  ColdFixCont == "Cold", RRfissionCold,
  ColdFixCont == "Fix", RRfissionFix,
  ColdFixCont == "Cont", RRfissionCont
]
(* "FR2-Bi" and "FR2-Sc" arbitrary (because not specified in reference) *)
```

Out[380]= $\frac{0.0132505}{s}$

■ Gamma ray emission probability

Determination of isotopic specific fission background

```
In[381]:= FissionProbPath = Which[
  SampleIsotope == "Pu-239", StringJoin[#, "fission-prob_Pu.csv"],
  SampleIsotope == "Pu-240", StringJoin[#, "fission-prob_Pu.csv"],
  SampleIsotope == "U-235", StringJoin[#, "fission-prob_U.csv"],
  SampleIsotope == "U-238", StringJoin[#, "fission-prob_U.csv"]] &[
  NotebookDirectory[]]
(*
  isotope          |          reference          |          comment
-----|-----|-----
Pu-239 and Pu-240 |          Hunter1972         |  $E_n = 10^{-5} \text{ eV} - 1.09 \cdot 10^6 \text{ eV}$ 
U-235 and U-238  | ENDF/B-VII.1 / Verbinski1973 | □
*)
```

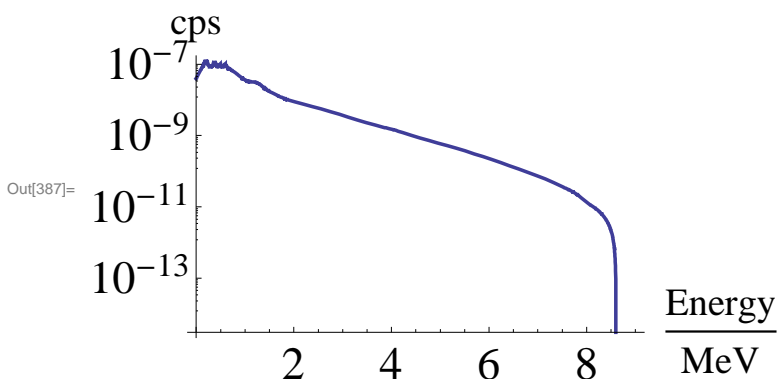
```
Out[381]:= Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik Postelt\sp
           n,gamma\Mathematica\estimate\fission-prob_Pu.csv
```

```
In[382]:= FissionProbFull = Import[FissionProbPath, "Table", "FieldSeparators" -> ";"];
FissionProbTable = Drop[FissionProbFull, 3];
```

```
In[384]:= FissionProb =
  Interpolation[FissionProbTable[[All, All]], InterpolationOrder -> 1];
(* Linear interpolation of the normalised gamma ray emission
   probability as pictured in the graph below *)
LogPlot[FissionProb[106 x], {x, 0, 8}, PlotRange -> Full,
  AxesLabel -> {Energy / MeV, Probability / MeV}];
```

■ Emitted fission background

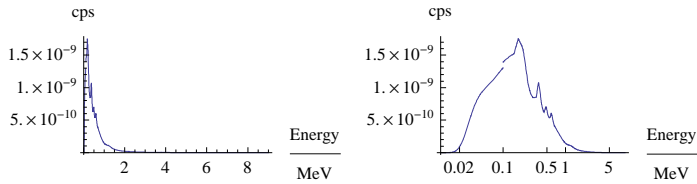
```
In[386]:= Efission[x_] = RRfissions 8.095 FissionProb[x];
LogPlot[Efission[106 x], {x, 0, 9}, PlotRange -> Full,
  AxesLabel -> {Style[Energy / MeV, FontSize -> 20], Style[cps, FontSize -> 20]},
  TicksStyle -> Large, PlotStyle -> Directive[AbsoluteThickness[1.85]]]
(* 8.095 gammas per fission [Hunter1972] - valid up to 1.09 MeV only *)
```



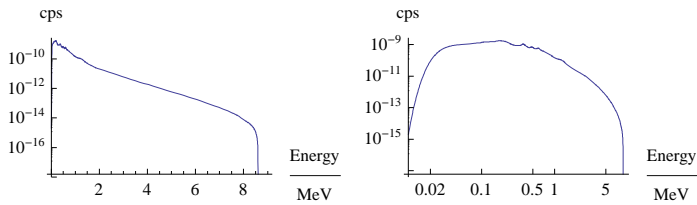
■ “Measured” fission background

```
In[388]:= Mfission[x_] = Efficiency[x] Efission[x];
```

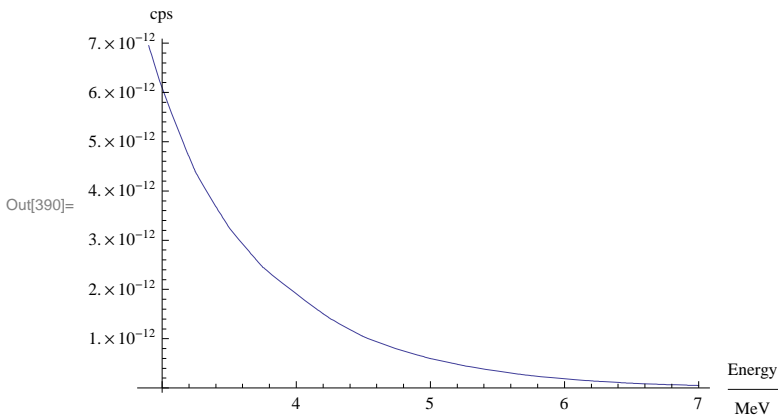
```
In[389]:= GraphicsGrid[{{Plot[Mfission[106 x], {x, 10-2, 9},
  PlotRange → Full, AxesLabel → {Energy / MeV, cps}],
  LogLinearPlot[Mfission[106 x], {x, 10-2, 9}, PlotRange → Full, AxesLabel →
  {Energy / MeV, cps}, Ticks → {{0.02, 0.1, 0.5, 1, 5}, Automatic}}],
  {LogPlot[Mfission[106 x], {x, 10-2, 9},
  PlotRange → Full, AxesLabel → {Energy / MeV, cps}],
  LogLogPlot[Mfission[106 x], {x, 10-2, 9}, PlotRange → Full,
  AxesLabel → {Energy / MeV, cps}, Ticks → {{0.02, 0.1, 0.5, 1, 5}, Automatic}}]}
```



Out[389]=



```
In[390]:= Plot[Mfission[106 x], {x, 2.9, 7},
  PlotRange → Full, AxesLabel → {Energy / MeV, cps}]
```



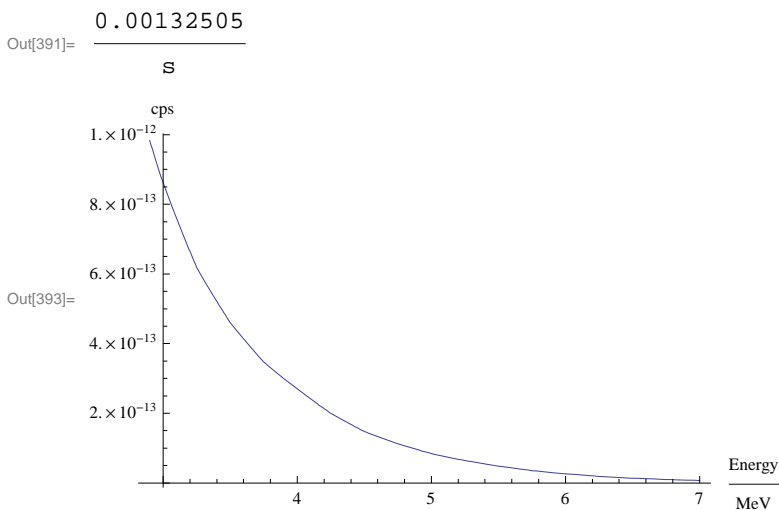
■ **Fission background uncertainty**

```

In[391]:=  $\Delta$ RRfission = Which[
  ColdFixCont == "Cold", RRfissionCold / 10,
  ColdFixCont == "Fix", RRfissionFix / 10,
  ColdFixCont == "Cont", RRfissionCont / 10
]
(* "FR2-Bi" and "FR2-Sc" arbitrary (because not specified in reference) *)

 $\Delta$ Mfission[x_] = 8.095 FissionProb[x]
   $\sqrt{((\Delta$ Efficiency[x] RRfission s)2 + (Efficiency[x]  $\Delta$ RRfission s)2)};
Plot[ $\Delta$ Mfission[106 x], {x, 2.9, 7}, PlotRange → Full,
  AxesLabel → {Energy / MeV, cps}]

```



Delayed background

Import of “delayed background ratios” as approximated from Matussek1970
 Pu-239 data is taken for both Pu isotopes, U-235 for both U isotopes

```

In[394]:= DelayedBackgroundMatussekPath = Which[
  SampleIsotope == "Pu-239", StringJoin[#, "PromptBG_DelayedBG_Pu.csv"],
  SampleIsotope == "Pu-240", StringJoin[#, "PromptBG_DelayedBG_Pu.csv"],
  SampleIsotope == "U-235", StringJoin[#, "PromptBG_DelayedBG_U.csv"],
  SampleIsotope == "U-238", StringJoin[#, "PromptBG_DelayedBG_U.csv"]] &[
  NotebookDirectory[]]

Out[394]= Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik Postelt\sp
  n,gamma\Mathematica\estimate\PromptBG_DelayedBG_Pu.csv

In[395]:= DelayedBackgroundMatussekFull =
  Import[DelayedBackgroundMatussekPath, "Table", "FieldSeparators" → ";"];

In[396]:= TableForm[DelayedBackgroundMatussekFull];

In[397]:= DelayedBackgroundMatussekFull1 = Drop[DelayedBackgroundMatussekFull, 4];

```

```
In[398]:= DelayedBackgroundMatussek1 =  
          DelayedBackgroundMatussekFull1[[All, 3 ;; 4]] /. {" ", " " } → Sequence[];  
  
In[399]:= DelayedBackgroundMatussek =  
          Interpolation[DelayedBackgroundMatussek1, InterpolationOrder -> 1];  
  
In[400]:= PromptBackgroundMatussek1 =  
          DelayedBackgroundMatussekFull1[[All, 1 ;; 2]] /. {" ", " " } → Sequence[];  
  
In[401]:= PromptBackgroundMatussek =  
          Interpolation[PromptBackgroundMatussek1, InterpolationOrder -> 1];  
  
In[402]:= DelayedBackgroundMatussekRatioPure[x_] =  
          DelayedBackgroundMatussek[x] / PromptBackgroundMatussek[x];
```

```

In[403]:= DelayedBackgroundMatussekMinimum = 0;
(* Max[Min[ DelayedBackgroundMatussek1[[All,1]]],
  Min[ PromptBackgroundMatussek1[[All,1]]]] *)
DelayedBackgroundMatussekMaximum =
  Min[Max[DelayedBackgroundMatussek1[[All, 1]]],
    Max[PromptBackgroundMatussek1[[All, 1]]]]
DelayedBackgroundMatussekInRange =
  DelayedBackgroundMatussekMinimum < x < DelayedBackgroundMatussekMaximum;
(* DELETE: The lower cut-off was set manually
  to 2.9 MeV to extend the interpolation,
  as some peaks of Uranium are still within this range. *)
DelayedBackgroundMatussekRatio[x_] =
  { DelayedBackgroundMatussekRatioPure[x] DelayedBackgroundMatussekInRange,
    { 0 True (*"otherwise"*)

GraphicsRow[
  {Plot[{PromptBackgroundMatussek[106 x], DelayedBackgroundMatussek[106 x]},
    {x, 10-6 DelayedBackgroundMatussekMinimum,
      10-6 DelayedBackgroundMatussekMaximum}, AxesLabel → {Energy / MeV, cps}],
  Plot[DelayedBackgroundMatussekRatio[106 x],
    {x, 10-6 DelayedBackgroundMatussekMinimum,
      10-6 DelayedBackgroundMatussekMaximum}, AxesLabel → {Energy / MeV, Ratio}]}]}

```

Out[404]= 6 800 000

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {138.914} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

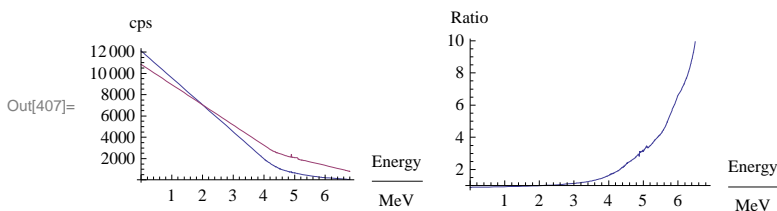
InterpolatingFunction::dmval :

Input value {138.914} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {138.914} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>



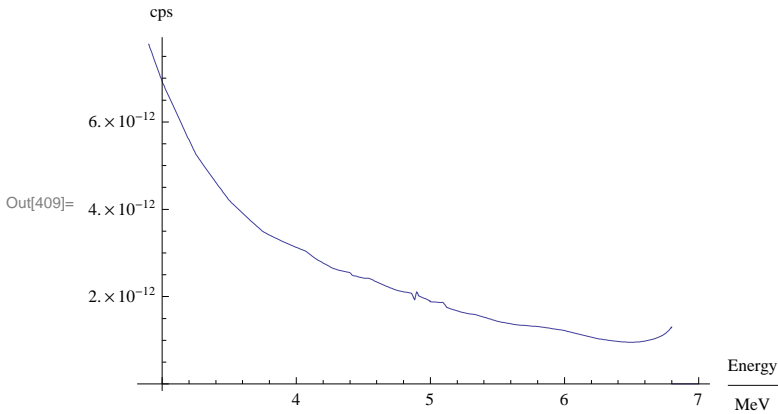
```
In[408]:= DelayedBackground =
  Function[x, Mfission[x] * DelayedBackgroundMatussekRatio[x]];
Plot[DelayedBackground[106 x], {x, 2.9, 7}, PlotRange -> Full,
  AxesLabel -> {Energy / MeV, cps}]
```

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {2.90008 × 10⁶} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {2.90008 × 10⁶} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>



■ **Delayed background uncertainty**

The uncertainties for the PromptBackgroundMatussek and DelayedBackgroundMatussek are due to manual conversion from printed spectra to digital data.

The Delayed background uncertainty is determined by uncertainty propagation.

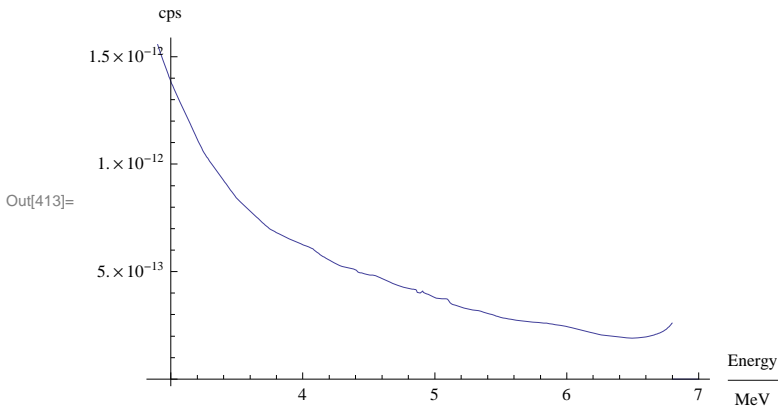
```
In[410]:= ΔPromptBackgroundMatussekRelative = 0.1;
ΔDelayedBackgroundMatussekRelative = 0.1;
ΔDelayedBackground[x_] = DelayedBackgroundMatussekRatio[x]
  √((ΔMfission[x])2 + (Mfission[x])2 ((ΔPromptBackgroundMatussekRelative)2 +
    (ΔDelayedBackgroundMatussekRelative)2));
Plot[ΔDelayedBackground[106 x], {x, 2.9, 7}, PlotRange -> Full,
  AxesLabel -> {Energy / MeV, cps}]
```

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {2.90008 × 10⁶} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {2.90008 × 10⁶} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>



Capture background

Import of "capture background ratios" as approximated from Matussek1970
Pu-239 data is taken for both Pu isotopes, U-235 for both U isotopes

```
In[414]:= CaptureBackgroundMatussekPath = Which[
    SampleIsotope == "Pu-239", StringJoin[#, "CaptureBG_Pu.csv"],
    SampleIsotope == "Pu-240", StringJoin[#, "CaptureBG_Pu.csv"],
    SampleIsotope == "U-235", StringJoin[#, "CaptureBG_U.csv"],
    SampleIsotope == "U-238", StringJoin[#, "CaptureBG_U.csv"]] &[
    NotebookDirectory[]]

Out[414]= Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik
    Postelt\sp n,gamma\Mathematica\estimate\CaptureBG_Pu.csv

In[415]:= CaptureBackgroundMatussekFull =
    Import[CaptureBackgroundMatussekPath, "Table", "FieldSeparators" -> ";"];

In[416]:= TableForm[CaptureBackgroundMatussekFull];

In[417]:= CaptureBackgroundMatussekFull1 = Drop[CaptureBackgroundMatussekFull, 4];

In[418]:= CaptureBackgroundMatussek1 =
    CaptureBackgroundMatussekFull1[[All, 1 ;; 2]] /. {" ", " " } -> Sequence[];

In[419]:= CaptureBackgroundMatussek =
    Interpolation[CaptureBackgroundMatussek1, InterpolationOrder -> 1];

In[420]:= CaptureBackgroundMatussekRatioPure[x_] =
    CaptureBackgroundMatussek[x] / PromptBackgroundMatussek[x];
```



```
In[421]:= CaptureBackgroundMatussekMinimum = 0;
(* Max[Min[ CaptureBackgroundMatussek1[[All,1]]],
  Min[ PromptBackgroundMatussek1[[All,1]]]] *)
CaptureBackgroundMatussekMaximum = 6.8 × 106;
(* Min[Max[CaptureBackgroundMatussek1[[All,1]]] ,
  Max[PromptBackgroundMatussek1[[All,1]]]] *)
CaptureBackgroundMatussekInRange =
  CaptureBackgroundMatussekMinimum < x < CaptureBackgroundMatussekMaximum;
(* DELETE: The lower cut-off was set manually
  to 2.9 MeV to extend the interpolation,
  as some peaks of Uranium are still within this range. *)
CaptureBackgroundMatussekRatio[x_] =
  { CaptureBackgroundMatussekRatioPure[x] CaptureBackgroundMatussekInRange,
    0 True (*"-otherwise"*)
```

```
GraphicsRow[
  {Plot[{PromptBackgroundMatussek[106 x], CaptureBackgroundMatussek[106 x]},
    {x, 10-6 CaptureBackgroundMatussekMinimum,
     10-6 CaptureBackgroundMatussekMaximum}, AxesLabel → {Energy / MeV, cps}],
  Plot[CaptureBackgroundMatussekRatio[106 x],
    {x, 10-6 CaptureBackgroundMatussekMinimum,
     10-6 CaptureBackgroundMatussekMaximum}, AxesLabel → {Energy / MeV, Ratio}]]]
```

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {138.914} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

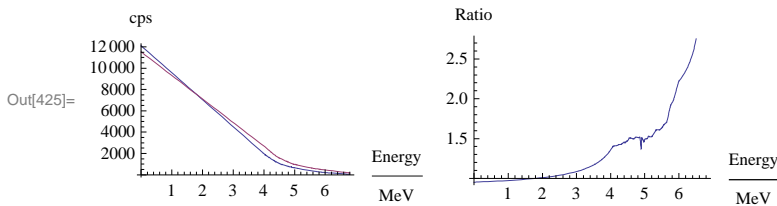
InterpolatingFunction::dmval :

Input value {138.914} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {138.914} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>



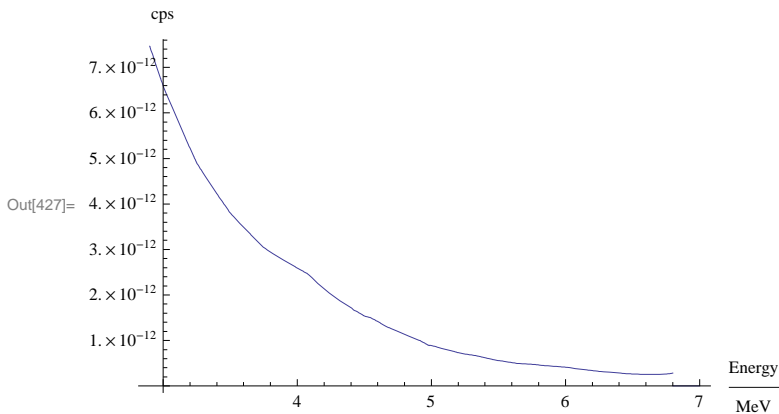
```
In[426]:= CaptureBackground =
  Function[x, Mfission[x] * CaptureBackgroundMatussekRatio[x]];
Plot[CaptureBackground[106 x], {x, 2.9, 7}, PlotRange → Full,
  AxesLabel → {Energy / MeV, cps}]
```

InterpolatingFunction::dmval :

Input value $\{2.90008 \times 10^6\}$ lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value $\{2.90008 \times 10^6\}$ lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>



■ Capture background uncertainty

The uncertainties for the CaptureBackgroundMatussek and PromptBackgroundMatussek are due to manual conversion from printed spectra to digital data.

The Capture background uncertainty is determined by uncertainty propagation.

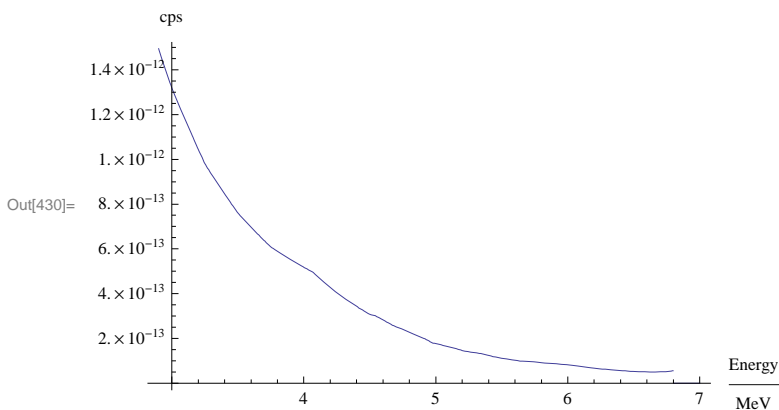
```
In[428]:= ΔCaptureBackgroundMatussekRelative = 0.1;
ΔCaptureBackground[x_] = CaptureBackgroundMatussekRatio[x]
  √((ΔMfission[x])2 + (Mfission[x])2 ((ΔPromptBackgroundMatussekRelative)2 +
    (ΔCaptureBackgroundMatussekRelative)2));
Plot[ΔCaptureBackground[106 x], {x, 2.9, 7}, PlotRange → Full,
  AxesLabel → {Energy / MeV, cps}]
```

InterpolatingFunction::dmval :

Input value $\{2.90008 \times 10^6\}$ lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value $\{2.90008 \times 10^6\}$ lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>



Estimate with fixed neutron flux and crosssection (for one peak)

■ Reaction rate

```
In[431]= RRfix = NIntegrate[ (TotalCrossFix ParticleDensity cm)
      E^(-TotalCrossFix ParticleDensity cm y), {y, 0, TargetDepth / cm}]
      FluxFix a / 100 TargetArea CrossFix / TotalCrossFix
```

```
Out[431]= 
$$\frac{59.4908}{s}$$

```

```
In[432]= ΔRRfix =
      Simplify[√((NIntegrate[ (TotalCrossFix ParticleDensity cm) E^(-TotalCrossFix
      ParticleDensity cm y), {y, 0, TargetDepth / cm}]
      ΔFluxFix a / 100 TargetArea CrossFix / TotalCrossFix)^2 +
      (NIntegrate[ (TotalCrossFix ParticleDensity cm)
      E^(-TotalCrossFix ParticleDensity cm y), {y, 0, TargetDepth / cm}]
      FluxFix a / 100 TargetArea ΔCrossFix / TotalCrossFix)^2) ]
```

```
Out[432]= 
$$\frac{0.823653}{s}$$

```

■ Count rate

```
In[433]= Tfix = RRfix Iefix (* detected γ's / s *)
      ΔTfix = Simplify[√((ΔRRfix Iefix)^2 + (RRfix ΔIefix)^2) ]
      (* Workarround to avoid √1/s^2 *)
```

```
Out[433]= 
$$\frac{0.0101245}{s}$$

```

```
Out[434]= 
$$\left\{ \frac{0.00116689}{s} \right\}$$

```

Estimate with continuous neutron flux and crosssection (for one peak)

```
In[435]:= RRcont = RRfissionCont =
  NIntegrate[ ((TotalCrossSection1[x] a / 100 + TotalCrossSection2[x] a2 / 100)
    10-24 cm2 ParticleDensity cm)
  E- (-(TotalCrossSection1[x] a / 100 + TotalCrossSection2[x] a2 / 100)
    10-24 cm2 ParticleDensity cm y)
  (NeutronFlux[x] eV * s TargetArea a / 100) CaptureCrossSection[x] /
  (TotalCrossSection1[x] a / 100 + TotalCrossSection2[x] a2 / 100),
  {x, 0, Infinity}, {y, 0, TargetDepth / cm}] / s
```

NIntegrate::izero :

Integral and error estimates are 0 on all integration subregions. Try increasing the value of the MinRecursion option. If value of integral may be 0, specify a finite value for the AccuracyGoal option. >>

Out[435]= 0.

```
In[436]:= ΔRRcont = RRcont ΔNeutronFluxRelative
```

Out[436]= 0.

```
In[437]:= Tcont = RRcont Iefix
```

```
ΔTcont = Simplify[√((ΔRRcont Iefix)2 + (RRcont ΔIefix)2)]
```

Out[437]= 0.

Out[438]= {0.}

Plots

```
In[439]:= RR = Which[
  ColdFixCont == "Cold", RRfix,
  ColdFixCont == "Fix", RRfix,
  ColdFixCont == "Cont", RRcont
]
```

Out[439]= $\frac{59.4908}{s}$

In[440]=

```

ARR = Simplify[Which[
  NeutronSource == "FRMII cold", ΔRRfix,
  NeutronSource == "FRMII thermal", ΔRRfix,
  NeutronSource == "Budapest cont", RRcont * source[[4, 7]],
  NeutronSource == "Budapest thermal", ΔRRfix,
  NeutronSource == "FR2-Bi", ΔRRfix,
  NeutronSource == "FR2-Sc", ΔRRfix,
  NeutronSource == "DD", RRcont * source[[8, 7]],
  NeutronSource == "DT", RRcont * source[[9, 7]],
  NeutronSource == "TT", RRcont * source[[10, 7]],
  NeutronSource == "Cf-252", RRcont * source[[11, 7]],
  NeutronSource == "1 Ci AmBe", RRcont * source[[12, 7]],
  NeutronSource == "DD therm factor", ΔRRfix,
  NeutronSource == "10 Ci AmBe", RRcont * source[[14, 7]],
  NeutronSource == "AmBe therm factor", ΔRRfix,
  NeutronSource == "DT therm factor", ΔRRfix,
  NeutronSource == "DD INT factor", RRcont * source[[17, 7]],
  NeutronSource == "DT INT factor", RRcont * source[[18, 7]],
  NeutronSource == "AmBe ITU factor", RRcont * source[[19, 7]]
]]

```

Out[440]= 0.

■ Count rate as a function of the flux

In[441]= Tflux[x_] = CrossFix NAX Iefix x ;

(* Count rate for one gamma line (as defined in assumptions, Ie=..)with variable neutron flux as x [The above defined fluxes are ignored] *)

```

ΔTflux[x_] = √((ΔCrossFix NAX Iefix)^2 + (CrossFix ΔNAX Iefix)^2 +
  (CrossFix NAX ΔIefix)^2 + (CrossFix NAX Iefix 0.01)^2) x
(* where a relative error of 1% is assumed for the neutron flux *)

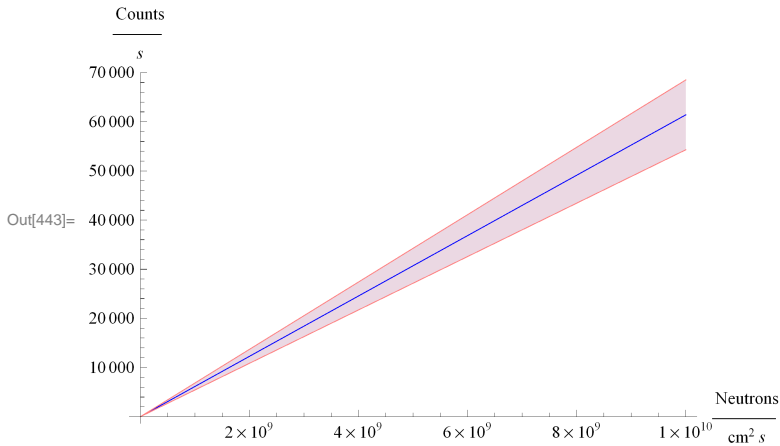
```

Out[442]= $\{7.1038 \times 10^{-7} \sqrt{\text{cm}^4} x\}$

```

In[443]= Plot[{Tflux[x] / cm2, (Tflux[x] / cm2 - ΔTflux[x] / √cm4),
  (Tflux[x] / cm2 + ΔTflux[x] / √cm4)}, {x, 0, 1010},
  Filling → {2 → {3}}, AxesLabel → {"Neutrons" cm-2 / s, "Counts" s-1},
  PlotRange → Full, PlotStyle → {Blue, Pink, Pink}]
(* /√cm4 / cm2 = workaround: can't plot variables with units *)

```

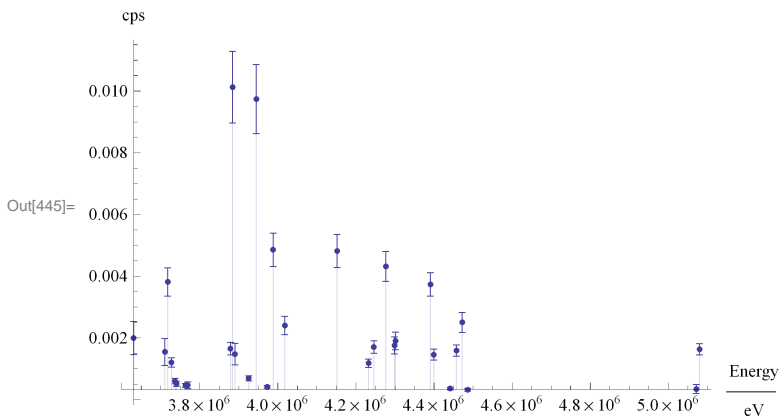


■ "Measured" spectrum

```

In[444]= Needs["ErrorBarPlots`"]
ErrorListPlot[Table[{IntensityEfficiency[[i, 1]],
  RR IntensityEfficiency[[i, 3]] s, √((ΔRR * IntensityEfficiency[[i, 4]] s)^2 +
  (RR * IntensityEfficiency[[i, 4]] s)^2)},
  {i, 1, Length[IntensityEfficiency]}], PlotRange → All,
  AxesLabel → {Energy / eV, cps}, Filling → Axis]
(* "Measured" spectrum *)

```



```

In[446]:= Gauss[x_] = Sum[RR IntensityEfficiency[[i, 3]] s
  PDF[NormalDistribution[IntensityEfficiency[[i, 1]],  $\frac{4000}{2 \sqrt{2 \text{Log}[2]}}$ ], x],
  {i, Length[IntensityEfficiency]};
GaussPlot = Plot[Gauss[x], {x, Min[IntensityEfficiency[[All, 1]] - 104],
  Max[IntensityEfficiency[[All, 1]] + 104]}, PlotRange → All,
  AxesLabel → {Energy / eV, cps}, Filling → Axis, AxesOrigin →
  {Min[IntensityEfficiency[[All, 1]]] - 5 × 104, 0}, PlotPoints → 500];

In[448]:= GaussPlotWithBackground =
  Plot[Gauss[x] + Mfission[x] + DelayedBackground[x] + CaptureBackground[x],
  {x, Min[IntensityEfficiency[[All, 1]]] - 104,
  Max[IntensityEfficiency[[All, 1]] + 104]},
  PlotRange → All, AxesLabel → {Energy / eV, cps},
  AxesOrigin → {Min[IntensityEfficiency[[All, 1]]] - 5 × 104, 0},
  PlotPoints → 500, PlotLabel → StringJoin[ToString[NeutronSource],
  ToString["_"], ToString[m], ToString[" "], ToString[Sample],
  ToString["_"], ToString[a], ToString["%"]]];

InterpolatingFunction::dmval :
  Input value {3.62052 × 106} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :
  Input value {3.62052 × 106} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :
  Input value {3.62052 × 106} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>

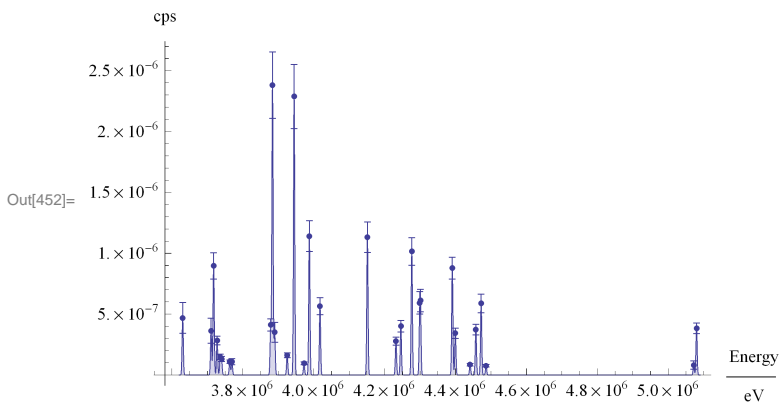
In[449]:= TableSpectrum = Table[{IntensityEfficiency[[i, 1]],
  RR IntensityEfficiency[[i, 3]] s,  $\sqrt{((\Delta RR * \text{IntensityEfficiency}[[i, 3]] s)^2 +$ 
  (RR * IntensityEfficiency[[i, 4]] s)^2),
   $\sqrt{((\Delta RR * \text{IntensityEfficiency}[[i, 3]] s)^2 +$ 
  (RR * IntensityEfficiency[[i, 4]] s)^2) /
  (RR IntensityEfficiency[[i, 3]] s)}, {i, 1, Length[IntensityEfficiency]};

In[450]:= GaussError =
  Table[{IntensityEfficiency[[i, 1]], Gauss[IntensityEfficiency[[i, 1]]],
  Gauss[IntensityEfficiency[[i, 1]]] * TableSpectrum[[i, 4]]},
  {i, 1, Length[IntensityEfficiency]};

In[451]:= GaussErrorPlot = ErrorListPlot[GaussError];

```

```
In[452]:= Show[GaussPlot, GaussErrorPlot]
```



```
In[453]:=
```

```
In[454]:= GaussWithBackgroundAndError =
```

```
Table[{IntensityEfficiency[[i, 1]], Mfission[x] + DelayedBackground[x] +
  CaptureBackground[x] + Gauss[x], Gauss[x] * TableSpectrum[[i, 4]]} /.
  x -> IntensityEfficiency[[i, 1]], {i, 1, Length[IntensityEfficiency]}];
```

```
InterpolatingFunction::dmval :
```

```
Input value {3987740} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>
```

```
InterpolatingFunction::dmval :
```

```
Input value {3987740} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>
```

```
InterpolatingFunction::dmval :
```

```
Input value {3987740} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>
```

```
General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>
```

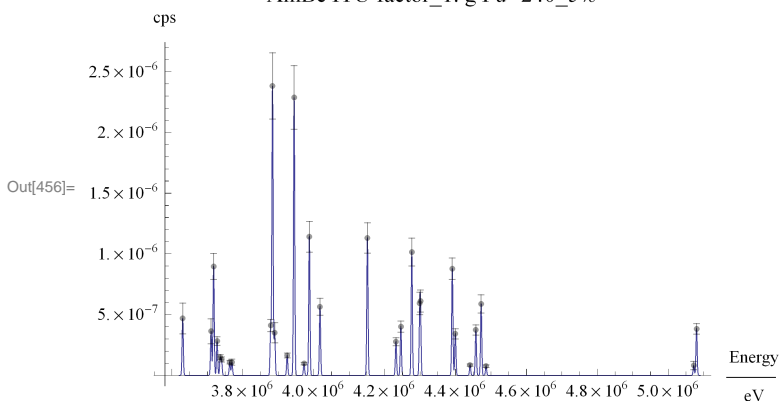
```
In[455]:= GaussPlotWithBackgroundAndError =
```

```
ErrorListPlot[GaussWithBackgroundAndError, PlotStyle -> {Black, Opacity[0.4]}];
```

```
In[456]:= Show[GaussPlotWithBackground, GaussPlotWithBackgroundAndError]
```

```
(* no error for background, these can be seen in table "source" (very top) *)
```

```
AmBe ITU factor_1. g Pu-240_5%
```



```
In[457]:= Export[StringJoin[NotebookDirectory[], ToString[mNo], ToString[NeutronSource],
  ToString["_"], ToString[m], ToString[" "], ToString[Sample], ToString["_"],
  ToString[a], ToString["%"], ".jpg"], %, ImageResolution -> 300]
```

```
Out[457]= Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik Postelt\sp
  n,gamma\Mathematica\estimate\GM105_AmBe ITU factor_1. g Pu-240_5%.jpg
```



```
In[458]:= "Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik Postelt\sp  
n,gamma\Mathematica\estimate\GM82_Budapest  
cont_0.0004293 g BNC-Pu-239_99.97%.jpg"
```

```
Out[458]= Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik  
Postelt\sp n,gamma\Mathematica\estimate\GM82_Budapest  
cont_0.0004293 g BNC-Pu-239_99.97%.jpg
```

```
In[459]:= IntensityEfficiency[[21, All]]
```

```
Out[459]= {3 883 890, 40, 0.000170186, 0.0000194726, 21}
```

```
In[460]:= TableSpectrum[[21, All]]
```

```
Out[460]= {3 883 890, 0.0101245, 0.00115844, 0.114419}
```

```
In[461]:= EmitSound[Play[Sin[440 × 2 Pi t], {t, 0, 1}]] (* beeps when finished *)
```

B.5.2 Kombination zweier Isotope

Combined Graphs

First Isotope

```
In[231]:= (* 1. evaluate the newest "Integrated" notebook with the first
isotope and then this cell. (shortcut: "shift"+"enter") *)
cmNo = "CG49_"; (* combined mathematica file version number *)
(* This notebooks creates a joint estimate for two isotopes. *)
Gauss1[x_] = Gauss[10^6 x]; (* all "ev" values are transformed in "MeV" *)
Mfission1[x_] = Mfission[10^6 x];
ΔMfission1[x_] = ΔMfission[10^6 x];
DelayedBackground1[x_] = DelayedBackground[10^6 x];
ΔDelayedBackground1[x_] = ΔDelayedBackground[10^6 x];
CaptureBackground1[x_] = CaptureBackground[10^6 x];
ΔCaptureBackground1[x_] = ΔCaptureBackground[10^6 x];
IntensityEfficiency1 =
  (IntensityEfficiency // Transpose) * {10^-6, 1, 1, 1, 1} // Transpose;
TableSpectrum1 = (TableSpectrum // Transpose) * {10^-6, 1, 1, 1} // Transpose;
Properties1 = StringJoin[ToString[NeutronSource],
  ToString["_"], ToString[m], ToString[" "], ToString[Sample]];
```

Second Isotope and combined graph

```
In[462]:= (* 2. Evaluate the "Integrated" notebook again with the second isotope of the
sample and then all cells of this title (most right bracket). Et voila.*)
Gauss2[x_] = Gauss[10^6 x];
Mfission2[x_] = Mfission[10^6 x];
ΔMfission2[x_] = ΔMfission[10^6 x];
DelayedBackground2[x_] = DelayedBackground[10^6 x];
ΔDelayedBackground2[x_] = ΔDelayedBackground[10^6 x];
CaptureBackground2[x_] = CaptureBackground[10^6 x];
ΔCaptureBackground2[x_] = ΔCaptureBackground[10^6 x];
IntensityEfficiency2 =
  (IntensityEfficiency // Transpose) * {10^-6, 1, 1, 1, 1} // Transpose;
TableSpectrum2 = (TableSpectrum // Transpose) * {10^-6, 1, 1, 1} // Transpose;
Properties2 = StringJoin[ToString[NeutronSource],
  ToString["_"], ToString[m], ToString[" "], ToString[Sample]];
Labelname = StringJoin[ToString[SourceName], ToString[" und "],
  ToString[m], ToString[" "], ToString[FMSample]];

f1[x_] = Gauss1[x] + Mfission1[x] + DelayedBackground1[x] + CaptureBackground1[x];
```

```

f2[x_] = Gauss2[x] + Mfission2[x] + DelayedBackground2[x] + CaptureBackground2[x];
f12[x_] = f1[x] + f2[x];
fP[x_] = Mfission1[x] + DelayedBackground1[x] + CaptureBackground1[x] +
  Mfission2[x] + DelayedBackground2[x] + CaptureBackground2[x] +
  ΔMfission1[x] + ΔMfission2[x] + ΔDelayedBackground1[x] +
  ΔCaptureBackground1[x] + ΔDelayedBackground2[x] + ΔCaptureBackground2[x];
fM[x_] = Mfission1[x] + DelayedBackground1[x] + CaptureBackground1[x] +
  Mfission2[x] + DelayedBackground2[x] + CaptureBackground2[x] -
  ΔMfission1[x] - ΔMfission2[x] - ΔDelayedBackground1[x] -
  ΔCaptureBackground1[x] - ΔDelayedBackground2[x] - ΔCaptureBackground2[x];

g[x_] = DelayedBackground1[x] + DelayedBackground2[x];
gP[x_] = g[x] + ΔDelayedBackground1[x] + ΔDelayedBackground2[x];
gM[x_] = g[x] - ΔDelayedBackground1[x] - ΔDelayedBackground2[x];

h[x_] = CaptureBackground1[x] + CaptureBackground2[x];
hP[x_] = h[x] + ΔCaptureBackground1[x] + ΔCaptureBackground2[x];
hM[x_] = h[x] - ΔCaptureBackground1[x] - ΔCaptureBackground2[x];

j[x_] = Mfission1[x] + Mfission2[x];
jP[x_] = j[x] + ΔMfission1[x] + ΔMfission2[x];
jM[x_] = j[x] - ΔMfission1[x] - ΔMfission2[x];

(* intensity uncertainty *)
Error1 = Table[
  {IntensityEfficiency1[[i, 1]], f12[x], Gauss1[x] * TableSpectrum1[[i, 4]]} /.
  x -> IntensityEfficiency1[[i, 1]], {i, 1, Length[IntensityEfficiency1]};
Error2 = Table[{IntensityEfficiency2[[i, 1]], f12[x],
  Gauss2[x] * TableSpectrum2[[i, 4]]} /. x -> IntensityEfficiency2[[i, 1]],
  {i, 1, Length[IntensityEfficiency2]};
Error = Join[Error1, Error2];
Show[Plot[{f12[x], g[x], h[x], j[x]}, {x, 2.9, 6.56}, PlotRange -> All, AxesStyle ->
  {FontFamily -> "LM Sans 12", CharacterEncoding -> "UTF-8"}, AxesLabel ->
  {Style[Energie / MeV, FontFamily -> "LM Sans 12", CharacterEncoding -> "UTF-8"],
  Style[cps, FontFamily -> "LM Sans 12", CharacterEncoding -> "UTF-8"]},
  AxesOrigin -> {2.9, 0}, PlotPoints -> 500, PlotStyle ->
  {RGBColor[0.03, 0.43, 0.11], Darker[Yellow], Darker[Blue], Darker[Red]},
  PlotLegends -> Placed[{Style["n, γ -Spektrum", FontFamily -> "LM Sans 12",
  CharacterEncoding -> "UTF-8"], Style["Verzögerte Spaltgammas",
  FontFamily -> "LM Sans 12", CharacterEncoding -> "UTF-8"],
  Style["Kontinuierliche Gammas", FontFamily -> "LM Sans 12",
  CharacterEncoding -> "UTF-8"], Style["Prompte Spaltgammas",
  FontFamily -> "LM Sans 12", CharacterEncoding -> "UTF-8"]}, {0.75, 0.75}],
  PlotLabel -> Style[Labelname, FontFamily -> "LM Sans 12",
  CharacterEncoding -> "UTF-8"]],
ErrorListPlot[Error, PlotStyle -> {RGBColor[0.03, 0.43, 0.11], Opacity[0.4]}],
Plot[{fP[x], fM[x], gP[x], gM[x], hP[x], hM[x], jP[x], jM[x]},
  {x, 2.9, 6.56}, PlotRange -> All,
  AxesOrigin -> {2.9, 0}, PlotPoints -> 500,
  PlotStyle -> {{RGBColor[0.03, 0.43, 0.11], Opacity[0.2]},
  {RGBColor[0.03, 0.43, 0.11], Opacity[0.2]},
  {Darker[Yellow], Opacity[0.2]}, {Darker[Yellow], Opacity[0.2]},
  {Darker[Blue], Opacity[0.2]}, {Darker[Blue], Opacity[0.2]},

```

```

    {Darker[Red], Opacity[0.3]}, {Darker[Red], Opacity[0.2]}}},
  Filling → {1 → {{2}, {{RGBColor[0.03, 0.43, 0.11], Opacity[0.1]},
    RGBColor[0.03, 0.43, 0.11], Opacity[0.1]}}},
    3 → {{4}, {{Darker[Yellow], Opacity[0.1]}, Darker[Yellow], Opacity[0.1]}}},
    5 → {{6}, {{Darker[Blue], Opacity[0.1]}, {Darker[Blue], Opacity[0.1]}}},
    7 → {{8}, {{Darker[Red], Opacity[0.1]}, Darker[Red], Opacity[0.1]}}}]

Export[StringJoin[NotebookDirectory[], ToString[cmNo], ToString[NeutronSource],
  ToString["_"], ToString[m], ToString[" "], ToString[FMSample], ".svgz"],
  %, ImageResolution → 1200, ImageSize → 500]

Properties1 (* for cross checking *)
Properties2
(* the following warning "InterpolatingFunction::dmval: "Input
value {...} lies outside the range of data in the interpolating
function. Extrapolation will be used." can be tolerated *)

InterpolatingFunction::dmval :
  Input value {6491500} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :
  Input value {6532800} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :
  Input value {3987740} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :
  Input value {3987740} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :
  Input value {3987740} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>

InterpolatingFunction::dmval :
  Input value {2.90001 × 106} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

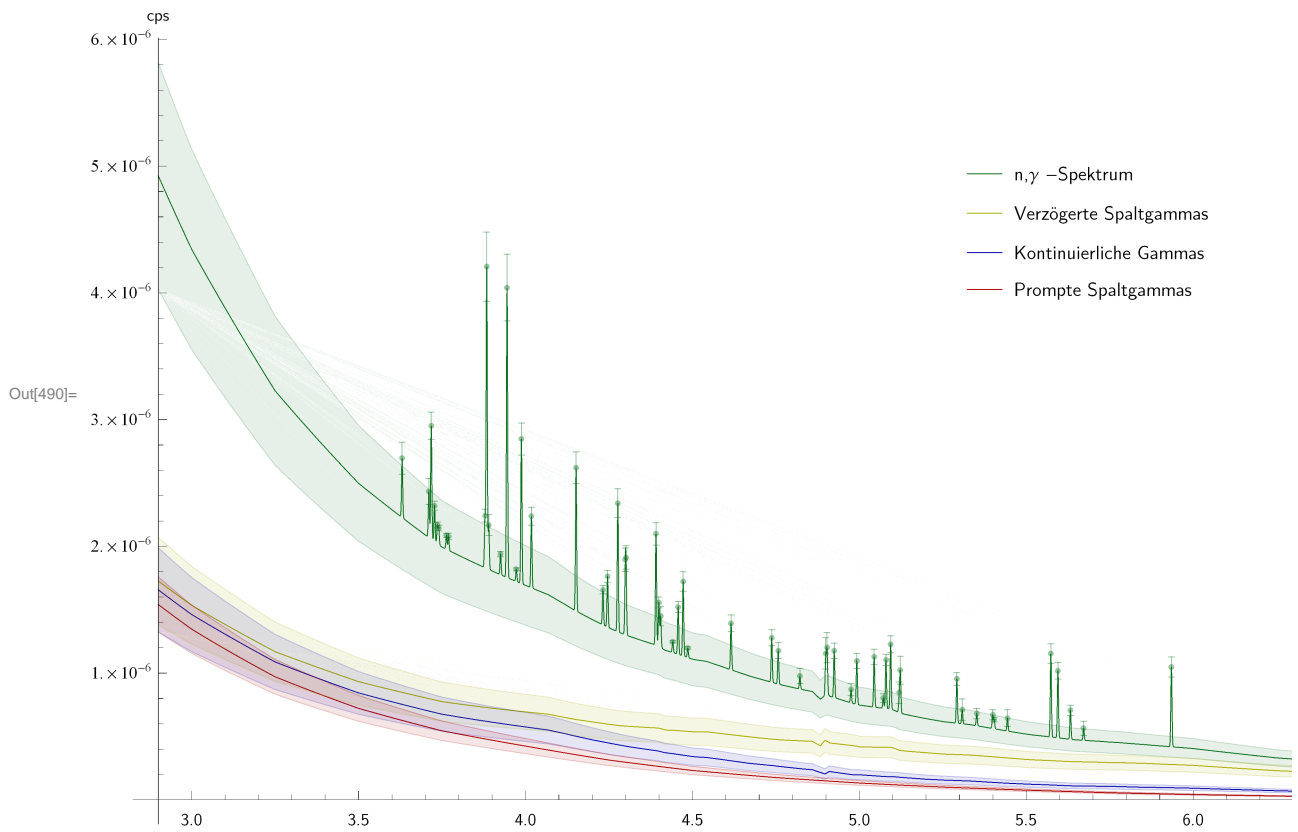
InterpolatingFunction::dmval :
  Input value {2.90001 × 106} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :
  Input value {2.90001 × 106} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>

```

thermalisierte ITU AmericiumBeryllium Quelle und 1. g Plutonium



Out[491]= Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik Postelt\sp
n,gamma\Mathematica\estimate\CG49_AmBe ITU factor_1. g Plutonium.svgz

Out[492]= AmBe ITU factor_1. g Pu-239

Out[493]= AmBe ITU factor_1. g Pu-240

Chopper and anti-coincidence graph

In[494]=

```

k[x_] = Gauss1[x] + Gauss2[x] + CaptureBackground1[x] + CaptureBackground2[x];
kP[x_] = CaptureBackground1[x] + CaptureBackground2[x] +
  ΔCaptureBackground1[x] + ΔCaptureBackground2[x];
kM[x_] = CaptureBackground1[x] + CaptureBackground2[x] -
  ΔCaptureBackground1[x] - ΔCaptureBackground2[x];

Error3 = Table[
  {IntensityEfficiency1[[i, 1]], k[x], Gauss1[x] * TableSpectrum1[[i, 4]]} /.
  x -> IntensityEfficiency1[[i, 1]], {i, 1, Length[IntensityEfficiency1]};
Error4 = Table[{IntensityEfficiency2[[i, 1]], k[x],
  Gauss2[x] * TableSpectrum2[[i, 4]]} /. x -> IntensityEfficiency2[[i, 1]],
  {i, 1, Length[IntensityEfficiency2]};
ErrorCAC = Join[Error3, Error4];

Show[Plot[{k[x], kP[x], kM[x]}, {x, 2.9, 6.56}, AxesOrigin -> {2.9, 0},
  AxesStyle -> {FontFamily -> "LM Sans 12", CharacterEncoding -> "UTF-8"},
  PlotLabel -> Style[Labelname, FontFamily -> "LM Sans 12",
  CharacterEncoding -> "UTF-8"], PlotPoints -> 500, PlotLegends ->
  Placed[Style["n-Pulse, n-γ-Anti-Koinzidenz", FontFamily -> "LM Sans 12",
  CharacterEncoding -> "UTF-8"], {0.7, 0.8}], PlotRange -> All, AxesLabel ->
  {Style[Energie / MeV, FontFamily -> "LM Sans 12", CharacterEncoding -> "UTF-8"],
  Style[cps, FontFamily -> "LM Sans 12", CharacterEncoding -> "UTF-8"]},
  PlotStyle -> {RGBColor[0.03, 0.43, 0.11], {RGBColor[0.03, 0.43, 0.11],
  Opacity[0.2]}, {RGBColor[0.03, 0.43, 0.11], Opacity[0.2]}},
  Filling -> {2 -> {{3}, {{RGBColor[0.03, 0.43, 0.11], Opacity[0.1]}},
  {RGBColor[0.03, 0.43, 0.11], Opacity[0.1]}},
  ErrorListPlot[ErrorCAC, PlotStyle -> {RGBColor[0.03, 0.43, 0.11],
  Opacity[0.2]}]]
Export[StringJoin[NotebookDirectory[], ToString[cmNo], ToString[CAC_],
  ToString[NeutronSource], ToString["_"], ToString[m], ToString[" "],
  ToString[FMSample], ".svgz"], %, ImageResolution -> 1200, ImageSize -> 500]

```

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {6491500} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {6532800} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {3987740} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {3987740} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {3972680} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {2.90001 × 10⁶} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

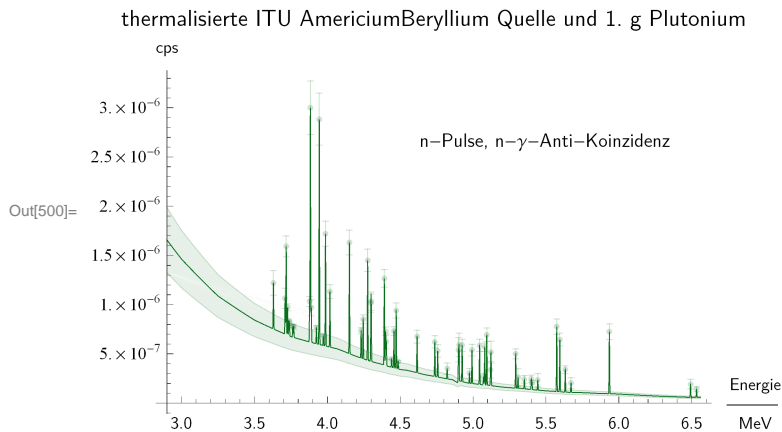
InterpolatingFunction::dmval :

Input value $\{2.90001 \times 10^6\}$ lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value $\{2.90001 \times 10^6\}$ lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>



Out[501]= `Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik Postelt\sp
n,gamma\Mathematica\estimate\CG49_CAC_AmBe ITU factor_1. g Plutonium.svgz`

In[502]= `"Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik Postelt\sp
n,gamma\Mathematica\estimate\CG31_CAC_FRMII thermal_1. g Plutonium.svgz"`

Out[502]= `Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik Postelt\sp
n,gamma\Mathematica\estimate\CG31_CAC_FRMII thermal_1. g Plutonium.svgz`

Export values as csv table

In[503]= `Export[StringJoin[NotebookDirectory[], ToString[cmNo],
ToString[NeutronSource], ToString["_"], ToString[m], ToString[" "],
ToString[FMSample], "_f12[x].csv"], Table[f12[x 10^-3], {x, 2900, 6560}]]`

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {2900000} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {2900000} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {2900000} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>

Out[503]= `Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik Postelt\sp
n,gamma\Mathematica\estimate\CG49_AmBe ITU factor_1. g Plutonium_f12[x].csv`

In[504]= `EmitSound[Play[Sin[800 x 4 Pi t], {t, 0, 1}]] (* beeps when finished *)`

Additional cross checking

```
LogLogPlot[{f1[x], f2[x]}, {x, 2.9, 6.5}, PlotRange → All,
  AxesLabel → {Energie / MeV, cps}, AxesOrigin → {2.9, 0},
  PlotPoints → 500, PlotLabel → StringJoin[ToString[NeutronSource],
    ToString["_"], ToString[m], ToString[" "], ToString[FMSample]]]
(* the following warning "InterpolatingFunction::dmval: "Input
  value {...} lies outside the range of data in the interpolating
  function. Extrapolation will be used." can be tolerated *)

(* Export[StringJoin[NotebookDirectory[], ToString[cmNo], ToString[both_],
  ToString[NeutronSource], ToString["_"], ToString[m], ToString[" "],
  ToString[FMSample], ".svg"], %, ImageResolution → 1200, ImageSize → 500] *)
```

InterpolatingFunction::dmval :

Input value $\{2.9 \times 10^6\}$ lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

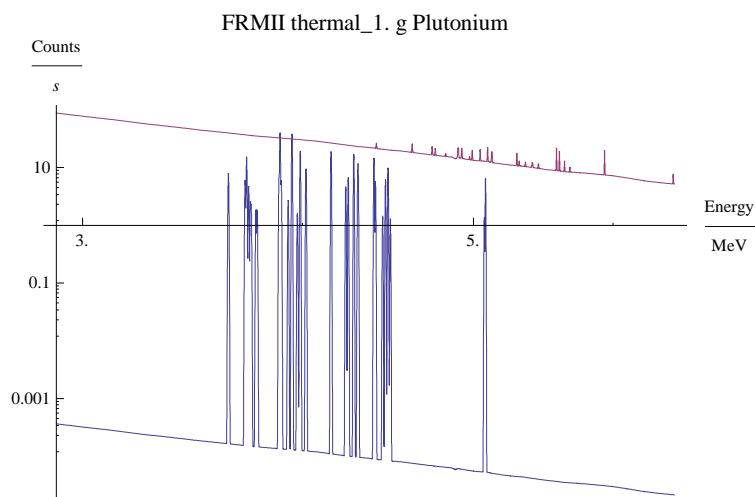
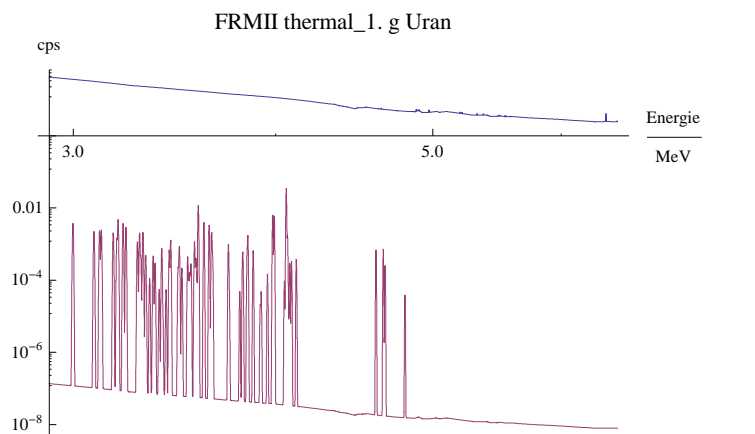
InterpolatingFunction::dmval :

Input value $\{2.9 \times 10^6\}$ lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value $\{2.9 \times 10^6\}$ lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>



B.5.3 Attenuation

Attenuation

```
aNo = "A05_"; (* mathematica file version number *)
```

```
Import data table
```

```
In[643]:= data2 = Import[StringJoin[NotebookDirectory[], "attenuation.csv"],  
  "Table", "FieldSeparators" -> ";";  
data = Drop[data2, 2];  
TableForm[data[{{1, 2, 3}}],  
  TableHeadings -> {None, {"Energy/eV", " $\mu/\rho/\text{cm}^2$ ", " $\mu_{\text{en}}/\rho/\text{cm}^2$ ", " $\mu/\text{cm}$ ", " $\mu_{\text{en}}/\text{cm}$ "}}]
```

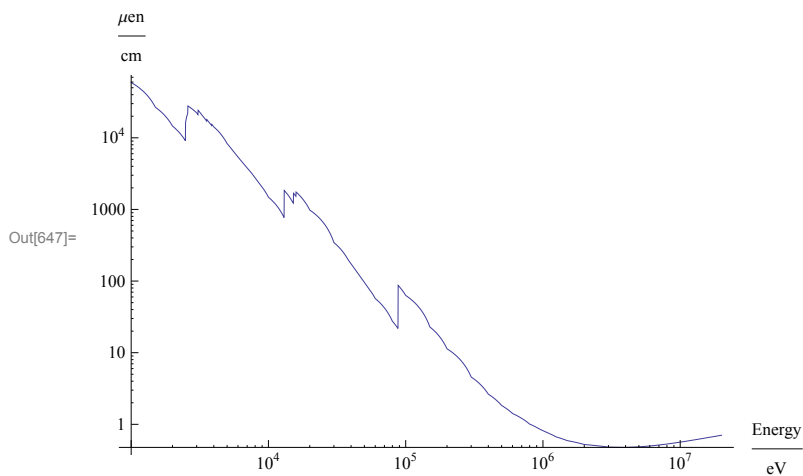
Out[645]/TableForm=

Energy/eV	$\mu/\rho/\text{cm}^2$	$\mu_{\text{en}}/\rho/\text{cm}^2$	μ/cm	$\mu_{\text{en}}/\text{cm}$
1000.	5210.	5197.	59133.5	58986.
1500.	2356.	2344.	26740.6	26604.4
2000.	1285.	1274.	14584.8	14459.9

```
In[646]:= muen = Interpolation[data[All, {1, 4}], InterpolationOrder -> 1]  
(* Nearest listed energy of the  $\mu_{\text{en}}$  table to a given value - step function *)
```

```
Out[646]= InterpolatingFunction[{{1000., 2.  $\times 10^7$ }}, <>]
```

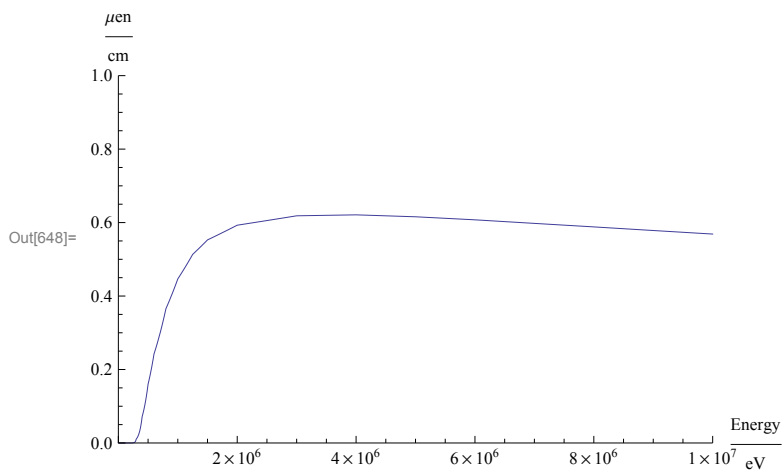
```
In[647]:= LogLogPlot[muen[x], {x, 103, 2  $\times 10^7$ },  
  PlotRange -> Full, AxesLabel -> {Energy / eV,  $\mu_{\text{en}} / \text{cm}$ }]
```



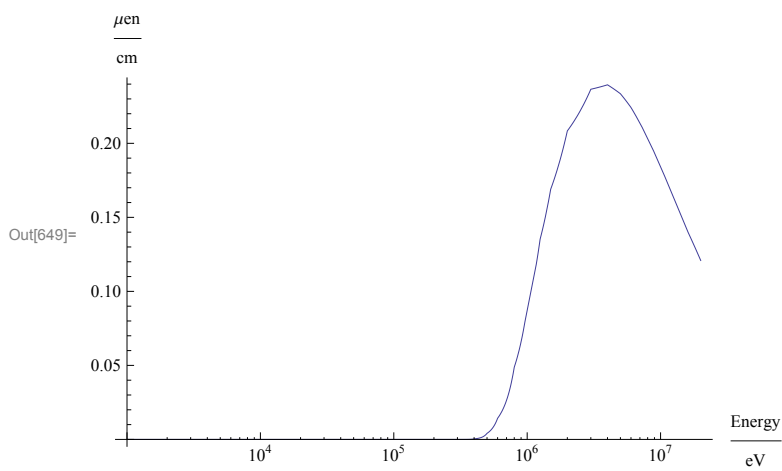
```
In[648]:= Plot[Exp[-1 muen[x]], {x, 0, 1 × 107}, PlotRange → {{0, 107}, {0, 1}},
  AxesLabel → {Energy / eV, μen / cm} (* 0.0021 10*)
```

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {204.286} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>



```
In[649]:= LogLinearPlot[Exp[-3 muen[x]], {x, 103, 2 × 107},
  PlotRange → Full, AxesLabel → {Energy / eV, μen / cm} (* 0.0021, 10*)
```



```
In[650]:= Plot[f12[x], {x, 0, 6.56}, PlotRange -> All, AxesLabel -> {Energy / MeV, Counts / s}]
```

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {134.011} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

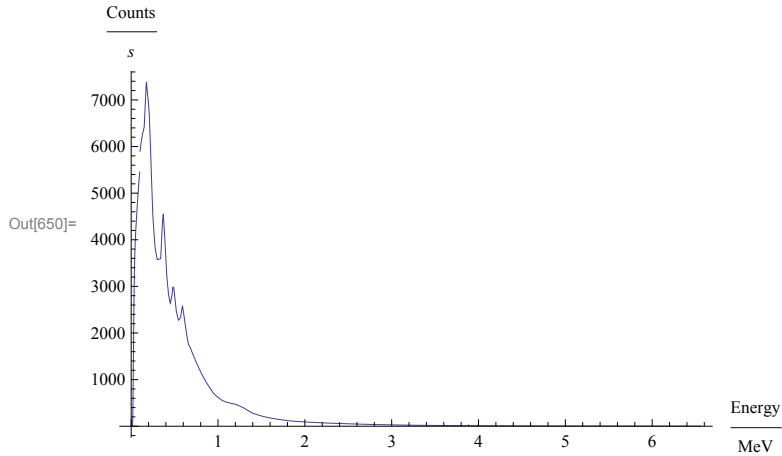
InterpolatingFunction::dmval :

Input value {134.011} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {134.011} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>



```

In[651]:= f = 0;
attenuated = Function[x, Exp[-f muen[x]]];
attenuated[4 × 106]
all = Function[x, f12[x] * attenuated[x 106]];
all[4]
LogLogPlot[all[x], {x, 1, 6.56}, PlotRange → All,
  AxesLabel → {Energy / MeV, Counts / s}, PlotLabel →
  StringJoin[ToString["Attenuated by "], ToString[f], ToString[ cm Pb]]]

```

Out[653]= 1.

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {4000000} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

Out[655]= 11.2476

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {1.00004 × 10⁶} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

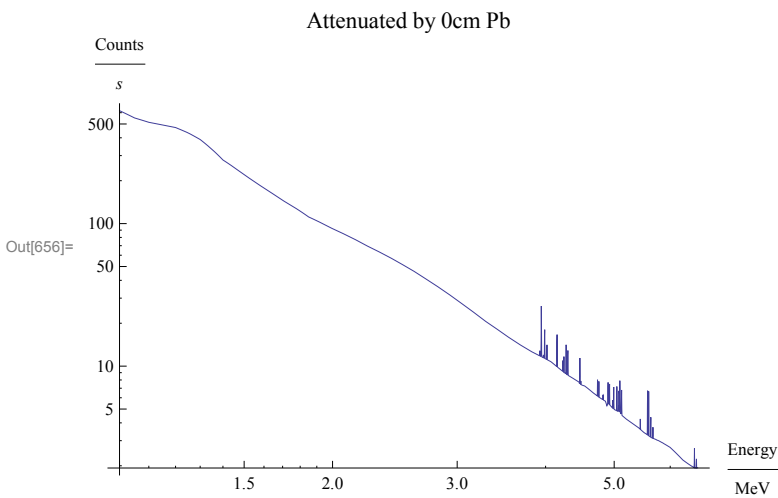
InterpolatingFunction::dmval :

Input value {1.00004 × 10⁶} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {1.00004 × 10⁶} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>



Plot

```

In[657]:= attenuated0 = Function[x, Exp[-0 muen[x]]];
attenuated3 = Function[x, Exp[-3 muen[x]]];
attenuated10 = Function[x, Exp[-10 muen[x]]];
attenuated20 = Function[x, Exp[-15 muen[x]]];
all10 = Function[x, f12[x] * attenuated0[x 106]];
all13 = Function[x, f12[x] * attenuated3[x 106]];
all110 = Function[x, f12[x] * attenuated10[x 106]];
all120 = Function[x, f12[x] * attenuated20[x 106]];

```

```
In[665]= LogLogPlot[{all10[x], all13[x], all110[x], all120[x]},
  {x, 0.2, 6.56}, PlotRange -> {10^-4, 10^5},
  AxesLabel -> {Energie / MeV, cps}, PlotLabel -> StringJoin[
    ToString["      Abschwächung von Gammastrahlung durch Blei"]],
  PlotLegends -> Placed[{" 0 cm", " 3 cm", "10 cm", "20 cm"}, {1, 0.5}],
  PlotStyle -> {RGBColor[0.03, 0.43, 0.11],
    RGBColor[0, 0.65, 0], RGBColor[0, 0.85, 0], Green}]
(* PlotStyle->{RGBColor[0.03,0.43,0.11],, ,Darker[Blue]} *)
```

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {200014.} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

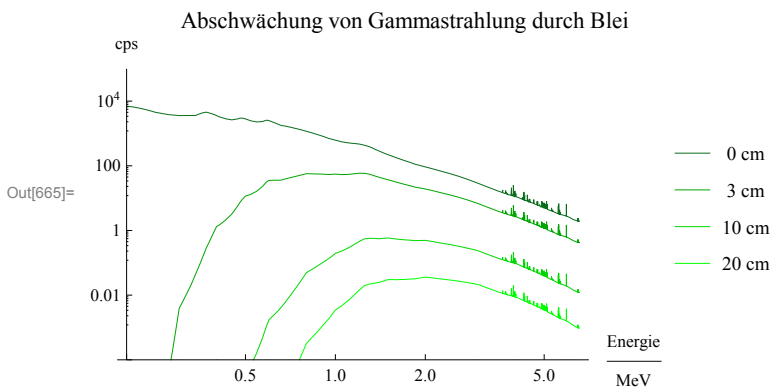
InterpolatingFunction::dmval :

Input value {200014.} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {200014.} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>



In[666]=

```
Export[StringJoin[NotebookDirectory[], ToString[aNo],
  ToString["attenuation of "], ToString[FMSample], ".svgz"],
  %, ImageResolution -> 1200, ImageSize -> 500]
```

Out[666]= Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik Postelt\sp
n,gamma\Mathematica\attenuation\A04_attenuation of Plutonium.svgz

```
In[667]= allCAC0 = Function[x, k[x] * attenuated0[x 10^6]];
allCAC3 = Function[x, k[x] * attenuated3[x 10^6]];
allCAC10 = Function[x, k[x] * attenuated10[x 10^6]];
allCAC20 = Function[x, k[x] * attenuated20[x 10^6]];
```

```
In[671]= LogLogPlot[{allCAC0[x], allCAC3[x], allCAC10[x], allCAC20[x]},
  {x, 0.2, 6.56}, PlotRange -> {10^-5, 10^4},
  AxesLabel -> {Energy / MeV, Counts / ("s^-1")}, PlotLabel -> StringJoin[
    ToString["Attenuation of "], ToString[FMSample], ToString[" with CAC"]],
  PlotLegends -> Placed[{" 0 cm Pb", " 3 cm Pb", "10 cm Pb", "20 cm Pb"}, {1, 0.5}]]
```

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {200014.} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

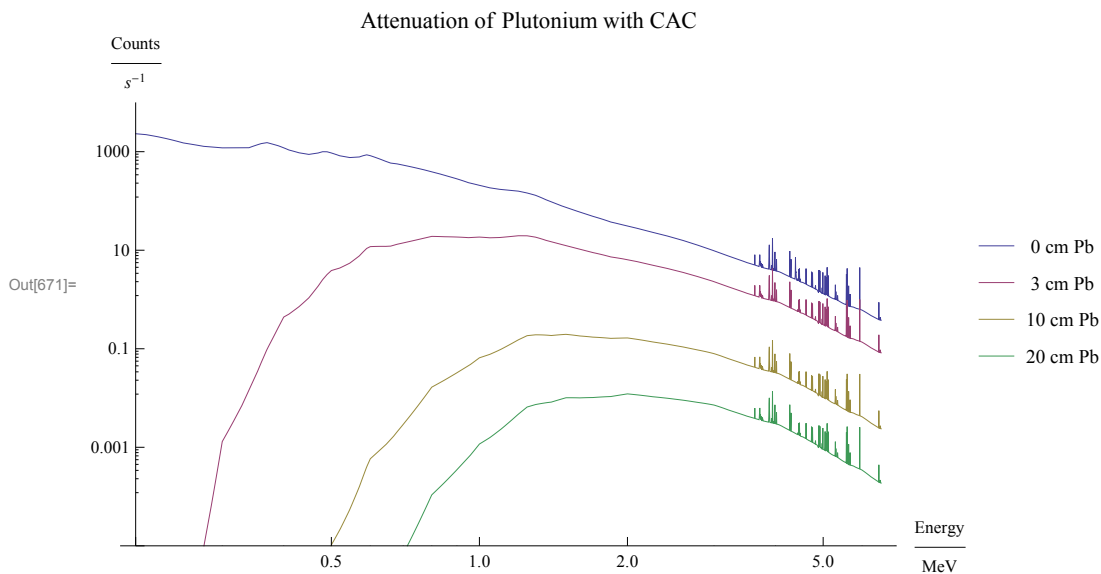
InterpolatingFunction::dmval :

Input value {200014.} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {200014.} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>

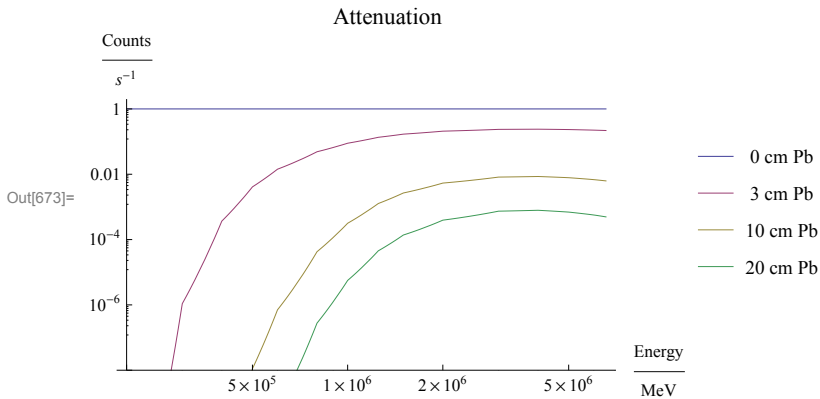


In[672]=

```
Export[StringJoin[NotebookDirectory[], ToString[aNo],
  ToString["attenuation of "], ToString[FMSample], ToString[" with CAC"],
  ".svgz"], %, ImageResolution -> 1200, ImageSize -> 500]
```

Out[672]= Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik Postelt\sp
n,gamma\Mathematica\attenuation\A04_attenuation of Plutonium with CAC.svgz


```
In[673]:= LogLogPlot[{attenuated0[x], attenuated3[x], attenuated10[x], attenuated20[x]},
  {x, 0.2 × 106, 6.56 × 106}, PlotRange → {10-8, 2},
  AxesLabel → {Energy / MeV, Counts / ("s-1")},
  PlotLabel → StringJoin[ToString["Attenuation"]], PlotLegends →
  Placed[{" 0 cm Pb", " 3 cm Pb", "10 cm Pb", "20 cm Pb"}, {1, 0.5}]]
```



```
In[674]:= Export[StringJoin[NotebookDirectory[], ToString[aNo], "attenuation", ".svgz"],
  %, ImageResolution → 1200, ImageSize → 500]
```

```
Out[674]= Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik Postelt\sp
  n,gamma\Mathematica\attenuation\A04_attenuation.svgz
```

```
In[675]:= attenuated15 = Function[x, Exp[-10 muen[x]]];
```

Attenuate and export csv

```
In[676]:= leadthickness = 5; (* thickness of the attenuating lead in cm *)
  attenuatedx = Function[x, Exp[-leadthickness muen[x]]];
  allx = Function[x, f12[x] * attenuatedx[x 106]];
```

```
In[679]:= Export[StringJoin[NotebookDirectory[], ToString[cmNo],
  ToString[NeutronSource], ToString["_"], ToString[m], ToString[" "],
  ToString[FMSample], ToString["_"], ToString[leadthickness],
  ToString["cm lead"], "_f12[x].csv"], Table[allx[x 10-3], {x, 2900, 6560}]]
```

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {2900000} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {2900000} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

InterpolatingFunction::dmval :

Input value {2900000} lies outside the range of data in the interpolating function. Extrapolation will be used. >>

General::stop : Further output of InterpolatingFunction::dmval will be suppressed during this calculation. >>

```
Out[679]= Z:\Mitarbeiter_innen\Frederik
  Postelt\sp n,gamma\Mathematica\attenuation\CG41_FRMII
  thermal_1. g Plutonium_5cm lead_f12[x].csv
```