

---

# Bestimmung des neutroneninduzierten Spaltquerschnitts von $^{242}\text{Pu}$

---

DISSERTATION

zur Erlangung des wissenschaftlichen Grades

Doctor rerum naturalium

(Dr. rer. nat.)

vorgelegt der Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften  
der Technischen Universität Dresden

von

**Dipl. Phys. Toni Jörg Kögler**

geboren am 11.09.1985 in Löbau

Eingereicht am 26.04.2016

Die Dissertation wurde in der Zeit von Juli 2011 bis April 2016 im Institut für  
Strahlenphysik, Helmholtz-Zentrum Dresden - Rossendorf angefertigt.

1. Gutachter: Prof. Dr. Thomas Cowan
2. Gutachter: Dr. Franz-Josef Hamsch

---

## Kurzdarstellung

Präzise neutroneninduzierte Spaltquerschnitte von Actinoiden wie den Plutoniumisotopen haben für die Entwicklung zukünftiger Transmutationstechnologien eine große Bedeutung. Die Unsicherheiten des  $^{242}\text{Pu}$ -Spaltquerschnitts im schnellen Bereich des Spektrums betragen derzeit etwa 21 %. Aktuelle Sensitivitätsstudien haben gezeigt, dass nur eine Reduzierung dieser Unsicherheiten auf unter 5 % verlässliche neutronenphysikalische Simulationen zulässt.

Diese anspruchsvolle Aufgabe konnte im Rahmen der vorliegenden Arbeit an der Neutronenflugzeitanlage *nELBE* durchgeführt werden. Dünne, homogene und großflächige Actinoiden-Proben wurden dem Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf innerhalb des TRAKULA-Verbundprojektes zur Verfügung gestellt. Eingesetzt in eine neu entwickelte Spaltionisationskammer ermöglichten sie eine akkurate Bestimmung des  $^{242}\text{Pu}$ -Spaltquerschnitts relativ zu  $^{235}\text{U}$ . Die Flächendichten der Plutoniumschichten wurden anhand der spontanen Spaltrate von  $^{242}\text{Pu}$  bestimmt. Aufwändige Teilchentransportsimulationen (durchgeführt mit Geant 4, MCNP 6 und FLUKA) wurden genutzt, um die auftretende Neutronenstreuung zu korrigieren. Die gewonnenen Ergebnisse sind im Rahmen ihrer Unsicherheiten in guter Übereinstimmung mit aktuellen Kerndatenevaluierungen.

## Abstract

Neutron induced fission cross sections of actinides like the Pu-isotopes are of relevance for the development of nuclear transmutation technologies. For  $^{242}\text{Pu}$ , current uncertainties are of around 21 %. Sensitivity studies show that the total uncertainty has to be reduced to below 5 % to allow for reliable neutron physics simulations. This challenging task was performed at the neutron time-of-flight facility of the new German National Center for High Power Radiation Sources at HZDR, Dresden. Within the TRAKULA project, thin, large and homogeneous deposits of  $^{235}\text{U}$  and  $^{242}\text{Pu}$  have been produced successfully. Using two consecutively placed fission chambers allowed the determination of the neutron induced fission cross section of  $^{242}\text{Pu}$  relative to  $^{235}\text{U}$ . The areal density of the Plutonium targets was calculated using the measured spontaneous fission rate. Experimental results of the fast neutron induced fission of  $^{242}\text{Pu}$  acquired at *nELBE* will be presented and compared to recent experiments and evaluated data. Corrections addressing the neutron scattering are discussed by using results of different neutron transport simulations (Geant 4, MCNP 6 and FLUKA).



# Inhaltsverzeichnis

<b>Inhaltsverzeichnis</b>	<b>vi</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1 Partitionierung und Transmutation . . . . .	4
1.2 Die Bedeutung von $^{242}\text{Pu}$ für P&T . . . . .	6
1.3 Bisherige Experimente . . . . .	7
1.4 Evaluierungen . . . . .	8
1.5 Gliederung dieser Arbeit . . . . .	14
<b>2 Spaltwahrscheinlichkeit</b>	<b>15</b>
2.1 Statistisches Modell und Compoundkern . . . . .	15
2.2 Kernreaktionsrechnungen . . . . .	22
<b>3 Die Neutronenflugzeitanlage <math>n\text{ELBE}</math></b>	<b>25</b>
<b>4 Spaltionsionskammern</b>	<b>31</b>
4.1 Die $n\text{ELBE}$ Spaltkammern . . . . .	32
4.1.1 Actinoidenschichten . . . . .	32
4.1.2 Aufbau . . . . .	40
4.1.3 Gasversorgung . . . . .	44
4.1.4 Optimierung des elektrischen Feldes . . . . .	48
4.1.5 Simulationen von Impulshöhenverteilungen . . . . .	50
4.2 Die PTB $^{235}\text{U}$ Spaltkammer H19 . . . . .	61
<b>5 Experimente zur Spaltung von <math>^{242}\text{Pu}</math></b>	<b>65</b>
5.1 Experimentelle Bestimmung neutroneninduzierter Spaltquerschnitte . . . . .	66
5.2 Messaufbau . . . . .	70
5.3 Datenaufnahme und -verarbeitung . . . . .	80
5.4 Datenanalyse . . . . .	85
5.4.1 Bestimmung der Spontanspaltrate . . . . .	94

---

5.4.2	Bestimmung des neutroneninduzierten Spaltquerschnitts von $^{242}\text{Pu}$	97
5.5	Ergebnisse und Diskussion	117
5.5.1	Diskussion	120
5.5.2	Unsicherheiten	122
5.5.3	Vergleich mit Kernreaktionsrechnungen	122
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>125</b>
	<b>Anhang</b>	<b>128</b>
A.1	Depositionszelle	128
A.2	Neutronenflugzeitanlagen	131
A.3	Spaltfragmentverteilungen mit GEF	132
A.4	Experimenteller Aufbau	136
A.5	Aufbau der Datenaufnahme/-verarbeitung	137
A.5.1	Verwendete Elektronik	139
A.6	Stabilität der Datenaufnahme	140
A.7	Konsistenzbetrachtung der Querschnittsbestimmung	142
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>145</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>163</b>
	<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>167</b>
	<b>Liste der verwendeten Akronyme</b>	<b>169</b>
	<b>Publikationen</b>	<b>173</b>

# 1 Einleitung

*„New sources of power [...] will surely be discovered. Nuclear energy is incomparably greater than the molecular energy we use today. The coal a man can get in a day can easily do five hundred times as much work as himself. Nuclear energy is at least one million times more powerful still. [...] There is no question among scientists that this gigantic source of energy exists. What is lacking is the match to set the bonfire alight, or it may be the detonator to cause the dynamite to explode. The scientists are looking for this.“*

Winston Churchill [1931]

Die effiziente Nutzung unserer endlichen Energieresourcen ist eine der größten Herausforderungen dieser Zeit. Während der Energieverbrauch der entwickelten Länder durch zurückgehende Bevölkerungszahlen und neue sparsamere Technologien bis ins Jahr 2050 nur geringfügig steigen wird, gehen aktuelle Prognosen [Frei et al., 2013] davon aus, dass der erhöhte Energiebedarf der Schwellen- und Entwicklungsländer den weltweiten Stromverbrauch verdoppeln wird.

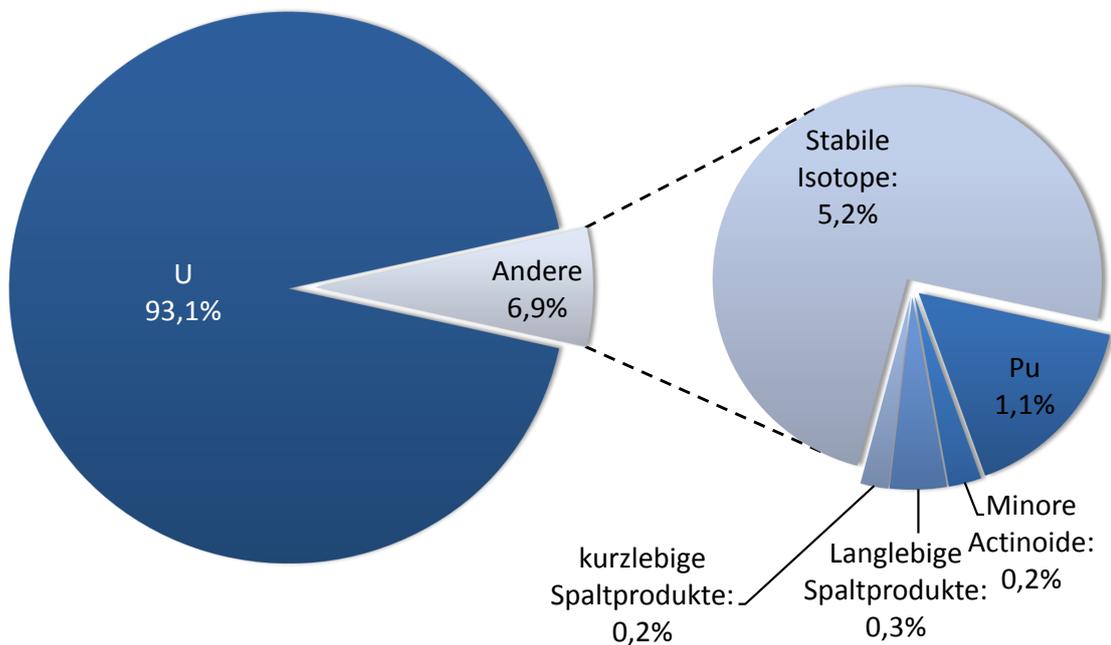
Auf der Suche nach neuen und größeren Energiequellen erkannten viele Wissenschaftler und Politiker in der ersten Hälfte des 20. Jahrhunderts das enorme Potential, das in der Bindungsenergie der Atomkerne steckt. Zwar bezieht sich der obige Auszug aus dem Strand Magazine auf die Kernfusion, doch nur sieben Jahre später sollte auch die Kernspaltung entdeckt werden. Mit der friedlichen Nutzung der Kernenergie ab Mitte der 1950er Jahre wurde ein neues Zeitalter eingeläutet.

Einer der wesentlichen Nachteile der Kernenergie ist die Langlebigkeit der Radiotoxizität<sup>1</sup> seines abgebrannten Brennstoffs. Die typische Zusammensetzung eines verbrauchten Uranoxid-Brennelements aus einem Leichtwasserreaktor ist in Abbildung 1.0.1 aufgeführt. Hauptbestandteil nach der Entnahme aus dem Reaktorkern ist mit 93,1 % weiterhin Uranoxid, welches im Wesentlichen aber nur noch das thermisch nicht spaltbare Isotop <sup>238</sup>U und in geringen Konzentrationen (ca. 0,5–0,7 %) <sup>236</sup>U und <sup>235</sup>U enthält. Das in deutschen

---

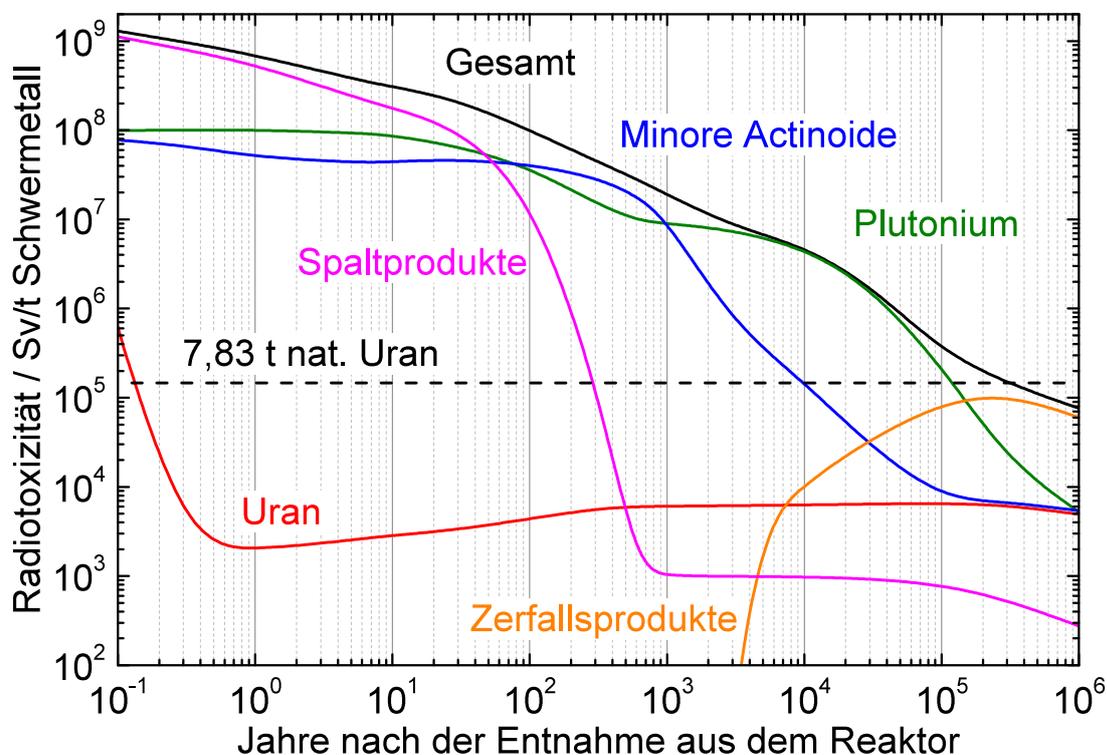
<sup>1</sup>In die Größe Radiotoxizität gehen neben der Aktivität des abgebrannten Kernbrennstoffs auch Wichtungsfaktoren für die Strahlenart sowie die Aufnahme und Verweildauer der Isotope im menschlichen Organismus ein.

Element	Anteil / %
<b>U</b>	<b>93,07</b>
<b>Pu</b>	<b>1,11</b>
<b>Minore Actinoide:</b>	<b>0,19</b>
<sup>237</sup> Np	0,08
<sup>241,243</sup> Am	0,10
<sup>242-248</sup> Cm	0,01
<b>Langlebige Spaltprodukte:</b>	<b>0,32</b>
<sup>129</sup> I	0,03
<sup>99</sup> Tc	0,12
<sup>93</sup> Zr	0,11
<sup>135</sup> Cs	0,06
<b>kurzlebige Spaltprodukte:</b>	<b>0,16</b>
<sup>137</sup> Cs	0,10
<sup>90</sup> Sr	0,06
<b>Stabile Isotope:</b>	<b>5,15</b>
Lanthaniden	1,59
andere Stabile	3,56



**Abbildung 1.0.1:** Zusammensetzung eines abgebrannten Uranoxid-Brennelements 10 Jahre nach der Entnahme aus einem Druckwasserreaktor bei einem Abbrand von 55 GW d (nach [Schwenk-Ferrero, 2013])

Leichtwasserreaktoren mit bis zu 4,6 % angereicherte  $^{235}\text{U}$  wurde gespalten. Die dabei entstandenen Spaltprodukte und deren Tochterkerne bilden in den ersten 40 Jahren nach der Entnahme den Großteil der anfallenden Radiotoxizität (vgl. Abbildung 1.0.2).



**Abbildung 1.0.2:** Radiotoxizität von 1  $t_{\text{SM}}$  abgebranntem Uranoxid-Brennstoff in Abhängigkeit von der Zeit nach der Entnahme aus dem Reaktor. Der Verlauf der Gesamtradiotoxizität (schwarz) und seiner Bestandteile (farbig) wurde für einen Druckwasserreaktor mit einem Abbrand von  $55 \frac{\text{GWd}}{t_{\text{SM}}}$  mit dem Computercode webKORIGEN [Fischer und Wiese, 1983, Nucleonica, 2016] ermittelt.

Zusätzlich werden durch Neutroneneinfang und sich anschließende  $\beta$ -Zerfälle pro Tonne abgebranntem Brennstoff etwa 10 kg Plutonium und minore Actinoide<sup>2</sup> im Reaktorkern erzeugt. Sie sind die Ursache für die Langlebigkeit der Gesamtradiotoxizität. Erst nach 300.000 Jahren ist sie für diese Isotope wieder auf das Niveau des für die Herstellung einer Tonne Brennstoffs verwendeten natürlichen Urans (7,83 t) abgefallen.

Unter Nutzung eines schnellen Neutronenspektrums lassen sich die meisten Actinoide jedoch ebenfalls spalten. Werden sie chemisch vom Uran und den Spaltfragmenten separiert, kann man ihre Bindungsenergie in speziellen Anlagen in nutzbare Energie umwandeln.

<sup>2</sup>Als Actinoide bezeichnet man die 15 Elemente des Periodensystems mit den Ordnungszahlen 89 bis 103. Die im Kernreaktor am häufigsten vorkommenden Actinoide Uran und Plutonium werden als majore Actinoide bezeichnet, alle weiteren (vor allem  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241,243}\text{Am}$ ,  $^{242-248}\text{Cm}$  und  $^{249-252}\text{Cf}$ ) unter den minoren Actinoiden zusammengefasst.

## 1.1 Partitionierung und Transmutation

Das gerade eben dargestellte Konzept von der Verwertung abgebrannter Kernbrennstoffe wird „**Partitionierung und Transmutation**“ (im Weiteren P&T) genannt. Dabei beschreibt die Partitionierung das chemische Abtrennen des Plutoniums und der minoren Actinoide aus verbrauchten Brennstäben. Der Begriff Transmutation steht für die kernphysikalische Umwandlung langlebiger Radioisotope in kürzerlebige.

Zukünftige Anlagen, in denen P&T angewendet werden soll, sind Reaktoren der Generation IV [[The Generation IV International Forum \(GIF\), 2014](#)] und beschleunigergestützte Systeme (engl.: accelerator driven systems, abgekürzt mit ADS) [[Salvatores et al., 1998](#)]. Mit ihrer Hilfe würde man bereits nach 1.000 Jahren im Endlager für wärmeentwickelnde, hochradioaktive Abfälle die gleiche Radiotoxizität erreichen wie nach 1.000.000 Jahren ohne P&T [[acatech, 2014](#)].

Anfang 2016 betrug die weltweit installierte elektrische Leistung der 440 Kernreaktoren 384 GW [[IAEA, 2016](#)]. Im Jahr 2014 haben sie zusammen eine Energie von 2,4 PWh bereitgestellt, was 11,5 % der globalen Stromerzeugung entspricht. Weitere 65 Reaktoren befinden sich derzeit im Bau, 173 sind bereits in der Planung und 337 wurden vorgeschlagen. Es ist zu erwarten, dass sich die installierte nukleare Leistung bis zum Jahr 2050 ebenfalls verdoppelt haben wird [[OECD und NEA, 2013](#)]. In der Europäischen Union (EU) waren 2015 132 Kernkraftwerke in Betrieb. Mit 127 GW<sub>e</sub> beträgt der Anteil der Kernenergie an der gesamten Elektrizitätsproduktion hier etwa 28 %.

Ein typischer Leichtwasserreaktor mit einer elektrischen Leistung von 1 GW<sub>e</sub> erzeugt pro Jahr etwa 20 m<sup>3</sup> ( $\cong$  27 t) abgebrannten Brennstoff, der bei sofortiger Endlagerung nach der Verkapselung etwa 75 m<sup>3</sup> einnimmt [[WNA, 2015](#)]. Werden die Brennelemente wiederaufbereitet, das heißt das enthaltene Uranoxid für die Produktion neuer Brennelemente genutzt, so handelt es sich nur noch um 3 m<sup>3</sup> verglasten Abfall, der im Endlager ein Volumen von 28 m<sup>3</sup> einnehmen würde. Bis zum Jahr 2010 sind so weltweit über 300.000 t hochgradig radioaktiver, wärmeentwickelnder Abfall angefallen.

Die Auswirkungen einer P&T-Strategie zur Behandlung abgebrannter Kernbrennstoffe in Deutschland sind in einer Studie der Deutschen Akademie der Technikwissenschaften [[acatech, 2013](#)] untersucht worden. Bei erfolgreicher industrieller Umsetzung von P&T könnten

- das Volumen der zur Endlagerung vorgesehenen, wärmeentwickelnden Abfälle auf ein Drittel (28.000 m<sup>3</sup>  $\rightarrow$  9.500 m<sup>3</sup>) reduziert,
- durch die Reduzierung der Radiotoxizität das Gefährdungspotential im Endlager minimiert,
- die Gefahr, dass Plutonium aus dem Endlager entwendet wird, gesenkt,

- nach Partitionierung mobile Spalt- und Aktivierungsprodukte besser konditioniert (z. B. durch Einbindung in eine keramische Matrix) und
- durch Abtrennung des Americiums die Wärmeentwicklung im Endlager gesenkt und damit die Mindestabstände der Einlagerungsstrecken verkürzt

werden.

Natürlich sind mit der Durchführung von P&T auch Risiken und Nachteile verbunden. Die Menge des vernachlässigbar wärmeentwickelnden, radioaktiven Abfalls würde sich voraussichtlich um ein Drittel erhöhen ( $300.000 \text{ m}^3 \rightarrow 400.000 \text{ m}^3$ ). Weiterhin ergibt sich für den Zeitraum, in dem P&T betrieben würde ( $\approx 150$  Jahre), ein erhöhtes Missbrauchsrisiko von radioaktiven Stoffen durch Dritte. Auch sollte erwähnt werden, dass die bereits verglasten Abfälle aus der Wiederaufbereitung durch P&T derzeit nicht weiter behandelt werden können.

Nachdem im Juni 2011 die Energiewende und der damit verbundene Ausstieg aus der Kernenergienutzung in Deutschland beschlossen wurde, wird sich P&T hier im Vergleich zur Endlagerung ökonomisch nicht lohnen. Der Grund dafür sind die vergleichsweise geringen bis 2022 angefallenen Abfallmengen. Eine Beteiligung an P&T bietet jedoch die Chance, dem „[...] Arbeitsplatz- und Kompetenzverlust in nukleartechnischen und insbesondere in Reaktorsicherheitsfragen [...]“ [acatech, 2014, S. 22] entgegenzuwirken.

Nach sorgfältiger Analyse aller Vor- und Nachteile empfiehlt die Studie eine Beteiligung Deutschlands an der europäischen P&T-Forschung. Das betrifft neben anlagenspezifischer und sicherheitsrelevanter Forschung auch den Bereich der Nuklearen Daten. „Durch geeignete Experimente und verbesserte Modelle müssen die Unsicherheiten in den nuklearen Datenbanken verkleinert werden, sowohl grundsätzlich als auch insbesondere für die *minoren Actinoiden*.“ [acatech, 2014, S. 28]. Bereits 2009 wurde auf nationaler Ebene ein Projekt für „**t**ransmutationsrelevante **k**ernphysikalische **U**ntersuchungen **l**anglebiger **A**ctinoide“ (abgekürzt TRAKULA) ins Leben gerufen. Bei TRAKULA handelt es sich um ein Verbundprojekt des Bundesministeriums für Bildung und Forschung (BMBF, Vertragsnummer 03NUK013A), an welchem vier Universitäten<sup>3</sup> und zwei außeruniversitäre Einrichtungen<sup>4</sup> beteiligt waren. Wie im Namen bereits ersichtlich, sollten innerhalb TRAKULAs transmutationsrelevante Reaktionen mit modernen technologischen und numerischen Methoden untersucht und dem nukleartechnischen Kompetenzverlust durch die Durchführung mehrerer Graduiertenseminare entgegengewirkt werden.

Als Nachfolger von EFNUDAT (2006-2010) und ERINDA (2010-2013) startete auf euro-

---

<sup>3</sup>Technische Universitäten Dresden und München, Universität zu Köln und Johannes Gutenberg Universität Mainz

<sup>4</sup>Helmholtz-Zentrum Dresden - Rossendorf, Physikalisch-Technische Bundesanstalt Braunschweig

päischer Ebene am 01.12.2013 das CHANDA-Projekt. CHANDA ist die Abkürzung für „Solving **C**hallenges in Nuclear **D**ata for the Safety of European Nuclear Facilities“ und ist in das EU-Rahmenprogramm FP7-Fission-2013 [[Europäische Kommission, 2006](#)] eingebettet. Seine 35 teilnehmenden Institutionen kommen aus 18 europäischen Ländern. Ziel des Projektes ist die Gewinnung akkurater Kerndaten für den sicheren und nachhaltigen Betrieb der bestehenden und geplanten kerntechnischen Anlagen. Dafür sollen Methoden entwickelt werden, die die Genauigkeit der Vorhersagen von Kernmodellen und Simulationsrechnungen solcher Anlagen überprüfen [[Gonzalez, 2013](#)]. Die Gewinnung präziser experimenteller Daten mit geringen Unsicherheiten und mit Relevanz für kerntechnische Anwendungen ist dafür eine Voraussetzung. EFNUDAT, ERINDA und CHANDA sind Beispiele für europäisches Engagement im Bereich der nuklearen Kerndatengewinnung. Die „Working Party on International Evaluation Co-operation“ (WPEC) der Nuclear Energy Agency (NEA) hat in [[WPEC, 2008](#)] eine Liste von Kernreaktionen zusammengestellt, deren Kerndaten für die Beschreibung bestehender Reaktoren und für die Entwicklung neuer Transmutationstechnologien nur unzureichend genau bekannt sind. Auf der sogenannten „High Priority Request List“ (abgekürzt mit HPR L, weitere Informationen siehe [[WPEC, 2011](#)]) befinden sich neben Nukliden, die in Brennelementen und dem verbrauchten Kernbrennstoff zu finden sind, auch Stoffe, die als Kühlmittel oder Konstruktionsmaterialien verwendet werden oder zukünftig verwendet werden sollen. In einer Sensitivitätsstudie mit Hilfe von modernen Reaktorsimulationen konnte die WPEC die Anforderungen an die Unsicherheiten dieser Kerndaten bestimmen.

## 1.2 Die Bedeutung von $^{242}\text{Pu}$ für P&T

Ein Anteil von 12% am abzutrennenden Plutonium und eine Halbwertszeit von 387.000 Jahren<sup>5</sup> machen  $^{242}\text{Pu}$  für zukünftige Transmutationsvorhaben besonders bedeutend.

Mit 0,013% ist der Anteil an  $^{242}\text{Pu}$  am gesamten verbrauchten Kernbrennstoff sehr gering [[Peiffer et al., 2011](#), [Schwenk-Ferrero, 2013](#)]. Für die neutroneninduzierte Spaltung dieses Isotops betragen die von der WPEC 2008 ermittelten Unsicherheiten 19-21% im Energiebereich zwischen 0,5-2,23 MeV. Um die oben erwähnten Anforderungen zu erfüllen, muss eine Reduzierung der Unsicherheiten in diesem Bereich auf 3-5% erfolgen.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Bestimmung des neutroneninduzierten Spaltquerschnitts von  $^{242}\text{Pu}$  im Energiebereich von 0,5-10 MeV und der damit verbundenen Reduzierung der bestehenden Unsicherheiten dieser Messgröße. Die folgenden beiden Un-

---

<sup>5</sup>Vernachlässigt man  $^{244}\text{Pu}$ , welches nur in geringen Mengen im abgebranntem Kernbrennstoff enthalten ist, so ist  $^{242}\text{Pu}$  das Plutoniumisotop mit der größten Halbwertszeit.

terkapitel geben einen kurzen Überblick über die zu dieser Reaktion bereits durchgeführten Experimente anderer Arbeitsgruppen und die auf diesen Daten basierenden Ergebnisse der Kerndatenevaluierungen und Modellrechnungen.

### 1.3 Bisherige Experimente

Tabelle 1.3.1 gibt einen Überblick über die seit 1960 durchgeführten Messungen zur experimentellen Bestimmung des neutroneninduzierten Spaltquerschnitts von  $^{242}\text{Pu}$ . Berücksichtigt wurden nur solche Resultate, deren Daten in referierten Journalen veröffentlicht wurden und die Spaltung oberhalb einer kinetischen Energie von 500 keV beschreiben. Um die Energieabhängigkeit vergleichen zu können, mussten mehr als 5 Datenpunkte in der EXFOR-Datenbank [Otuka et al., 2014] im betreffenden Energiebereich vorhanden sein.

Alle hier präsentierten Messungen sind relativ zum  $^{235}\text{U}$ -Spaltquerschnitt (abgekürzt durch  $\sigma_{(n,f)}^{235\text{U}}$ ) bestimmt. Die Daten aus [Behrens et al., 1978] und [Tovesson et al., 2009] wurden bei ausgewählten Energien zusätzlich auf  $\sigma_{(n,f)}^{239\text{Pu}}$  normiert. Für Neutronenenergien unterhalb von 100 keV bezieht sich die Messung von [Auchampaugh et al., 1971] auf den Wirkungsquerschnitt der Reaktion  $^6\text{Li}(n,\alpha)$ . Die aktuellste von [Salvador-Castiñeira et al., 2015] ist noch nicht in der Datenbank enthalten und nimmt eine Sonderstellung ein. Für unterschiedliche Energiebereiche wurde der Wirkungsquerschnitt dort relativ zu  $^{237}\text{Np}(n,f)$ ,  $^{238}\text{U}(n,f)$  und  $^{235}\text{U}(n,f)$  bestimmt, wobei die Messung relativ zu  $^{238}\text{U}$  dann noch auf das Verhältnis von  $^{238}\text{U}(n,f):^{235}\text{U}(n,f)$  renormiert wurde. Anfang Januar 2016 wurde dieses Experiment am Van de Graaff Beschleuniger des Nationalen Physikalischen Labors (NPL) in Teddington wiederholt, da es Schwierigkeiten bei der Auswertung der gewonnenen Daten gab.

Je nachdem, ob es sich bei den in EXFOR enthaltenen Messwerten um absolut oder relativ angegebene Daten handelt, wurden die Messungen in der Tabelle gruppiert. Absolut vorliegende Messwerte befinden sich im oberen Teil. Beim Vergleich mit diesen muss unbedingt der zugrunde liegende Referenzquerschnitt beachtet werden. Gegebenenfalls müssen die Messwerte renormiert werden. Die Daten im mittleren Teil sind als Verhältnis zur Referenzreaktion angegeben und beschreiben damit die eigentliche Messgröße. Entsprechend dieser Untergliederung sind die Ergebnisse dieser Messungen in Abbildung 1.3.1 (a) und (b) grafisch dargestellt.

Zusätzlich zu den hier erwähnten Messungen wurde im Rahmen des Metrofission-Projekts im Jahr 2013 der neutroneninduzierte Spaltquerschnitt von  $^{242}\text{Pu}$  an der Beschleunigeranlage PIAF bestimmt. An dieser Messung an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt Braunschweig war ich beteiligt. Die Daten von diesem Experiment konnten jedoch noch

nicht ausgewertet werden. Auch an CERN n\_ToF wurden Messungen zur Bestimmung des  $^{242}\text{Pu}(n,f)$ -Wirkungsquerschnitts durchgeführt. Dabei kamen sowohl Spaltionskammern, als auch PPACs („parallel plate avalanche counter“) zum Einsatz. Aufgrund von Problemen mit den dort verwendeten Detektoren wurden die Ergebnisse dieser Experimente jedoch noch nicht veröffentlicht.

Während die gezeigten Daten an der Spaltschwelle in sehr guter Übereinstimmung sind, gibt es im Bereich des ersten Plateaus (1-5 MeV) erhebliche Unterschiede. Vor allem die frühen Messungen von Butler, Auchampaugh et al. und Bergen et al. haben in diesem Bereich auch die größten Unsicherheiten. Die Unsicherheiten der Messung von Weigmann et al. und Tovesson et al. in diesem Bereich sind deutlich geringer, innerhalb dieser sind beide Datensätze jedoch nicht miteinander verträglich. Die Messung von Weigmann et al. zeigt zusätzlich noch mehr Struktur in diesem Bereich. Am zweiten Maximum haben beide Messungen einen entgegengesetzten Verlauf. Eine Renormierung der Weigmann-Daten auf den Referenzquerschnitt der Tovesson-Messung ( $\sigma_{(n,f)}^{235\text{U}}$ , ENDF/B-V  $\rightarrow$  ENDF/B-VII) konnte diese Diskrepanz nicht vollständig beheben (siehe dazu Abb. 5.5.1). Die Messung von Staples et al., welche früher als die Tovesson-Messung mit der gleichen Probe, dem gleichen Detektor und an derselben Anlage ausgeführt wurde, ist im Energiebereich von  $1\text{ MeV} < E_n < 8\text{ MeV}$  ebenfalls nicht mit den beiden betrachteten kompatibel. Ihre Energieabhängigkeit hat jedoch einen vergleichbaren Verlauf. Die Kernexplosionsmessung von Auchampaugh et al. weicht wie die Messung von Fomushkin et al. am Van-de-Graff-Beschleuniger des Kurtschatow-Instituts im Plateaubereich um fast 20 % von den anderen Messungen ab. Auch in der Beschreibung des zweiten Anstiegs gibt es große Unterschiede zu den anderen Datensätzen.

Die große Diskrepanz zwischen den einzelnen Datensätzen macht eine Evaluierung der Reaktion schwierig und ist die Ursache für die Forderung nach weiteren Messungen mit Genauigkeiten im Bereich von 3-5 % durch die High Priority Request List der NEA.

Einen Überblick über die aktuellen evaluierten Datensätze gibt das folgende Unterkapitel.

## 1.4 Evaluierungen

Kerndatenevaluierungen haben eine wesentliche Bedeutung für kernphysikalische Anwendungen. Sie sind die Grundlage von Sensitivitätsanalysen, Strahlenschutzrechnungen, von Therapieplänen in der Radioonkologie und allen anderen Tätigkeitsfeldern, bei denen kernphysikalische Reaktionen eine Rolle spielen.

Derzeit existieren fünf teils nationale, teils internationale Hauptbibliotheken, die am Beispiel der Reaktion  $^{242}\text{Pu}(n,f)$  im Folgenden kurz vorgestellt und im Anschluss diskutiert

**Tabelle 1.3.1:** Zusammenstellung bisheriger Messungen zur Bestimmung des neutroneninduzierten Spaltquerschnitts von  $^{242}\text{Pu}$ . Die Tabelle gibt einen Überblick über die zugrunde liegenden Publikationen, verwendeten Neutronenquellen und wesentlichen Eigenschaften des Experiments und der gewonnenen Daten. Zum Vergleich der Spaltproben wurde die Massenflächendichte  $m_A$  angegeben. Die aktuellste Messung von Salvador-Castineira et al. ist noch nicht in der EXFOR-Datenbank enthalten.

Autor, Jahr	Neutronen-Quelle		Detektor		Proben		Daten		
	Institut	Reaktion	$E_n/\text{MeV}$	Detektor	Art	$m_A/\mu\text{g}/\text{cm}^2$	#	$\sigma_{\text{sys}}/\%$	$\sigma_{\text{stat}}/\%$
<b>Butler, 1960</b>	ANL	$^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$	0,1-1,7	GSZ	ED	30	65	3,5	5,5
<b>Auchampaugh et al., 1971</b>	LANL	EXPLO	$29 \cdot 10^{-6}$ -10	SD	VD	775	6367	6,2 <sup>†</sup>	4-33
<b>Bergen und Fullwood, 1971</b>	LANL	EXPLO	$50 \cdot 10^{-6}$ -5 0,1-3	SD	VD	562	1236	5,8	6,5-7
<b>Weigmann et al., 1985</b>	CBNM	$^{238}\text{U}(\gamma,n)$	$2 \cdot 10^{-6}$ -10	PPFIC	ED	250	222	3 <sup>§</sup>	0,11-1,24
<b>Tovesson et al., 2009</b>	LANL	SPALL	$1 \cdot 10^{-6}$ -200	PPFIC	ED*	126	1000	3	0,5-14 <sup>§</sup>
<b>Fomushkin und Gutnikova, 1969</b>	KIAE	$^3\text{T}(p,n)^3\text{He}$	0,4-3,63	GLASD			14		4-25
<b>Behrens et al., 1978</b>	LLNL	Ta( $\gamma,n$ )	0,1-33	PPFIC	PT	150	140	0,4-1,7	0,6-18,1
<b>Meadows, 1978a</b>	ANL	$^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ $^2\text{D}(d,n)^3\text{He}$	0,4-5 5-10	PPFIC	ED	†	49	1,3-1,7	0,8-3,2
<b>Kupriyanov et al., 1979</b>	IPPE	$^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ $^3\text{T}(p,n)^3\text{He}$ $^2\text{D}(d,n)^3\text{He}$	0,127-0,342 0,313-3,4 3,6-7,4	PPFIC			73	2,0	0,9-5
<b>Iwasaki et al., 1990</b>	TohU	$^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ $^3\text{T}(p,n)^3\text{He}$ $^2\text{D}(d,n)^3\text{He}$	0,6-1,4 1,8-2,7 3,6-6,9	PPFIC	ED	10,46	17	0,8-2,4	1,2-1,6
<b>Staples und Morley, 1998</b>	LANL	SPALL	0,5-400	PPFIC	ED*	126	226	1,27-2,45	0,64-3,49
<b>Salvador-Castineira et al., 2015</b>	IRMM	$^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ $^3\text{T}(p,n)^3\text{He}$	0,3-1,8 1,6-3,0	TFGIC	ED	95,3	25	2,8-5 1,3-4	0,5 0,5

#### Institutionen:

ANL ... Argonne National Laboratorium, USA  
 CBNM ... Zentralbüro für Kernmessungen (heute: IRMM), Belgien  
 IPPE ... Physikalisch-Energetisches-Institut  
 A. I. Leipunsky, Russland  
 IRMM ... Institut für Referenzmaterialien und Messungen, Belgien  
 LANL ... Los Alamos National Laboratorium, USA  
 LLNL ... Lawrence Livermore National Laboratorium, USA  
 KIAE ... Kurtschatow-Institut für Atomenergie, Russland  
 TohU ... Universität Tohoku, Japan

#### Reaktionen:

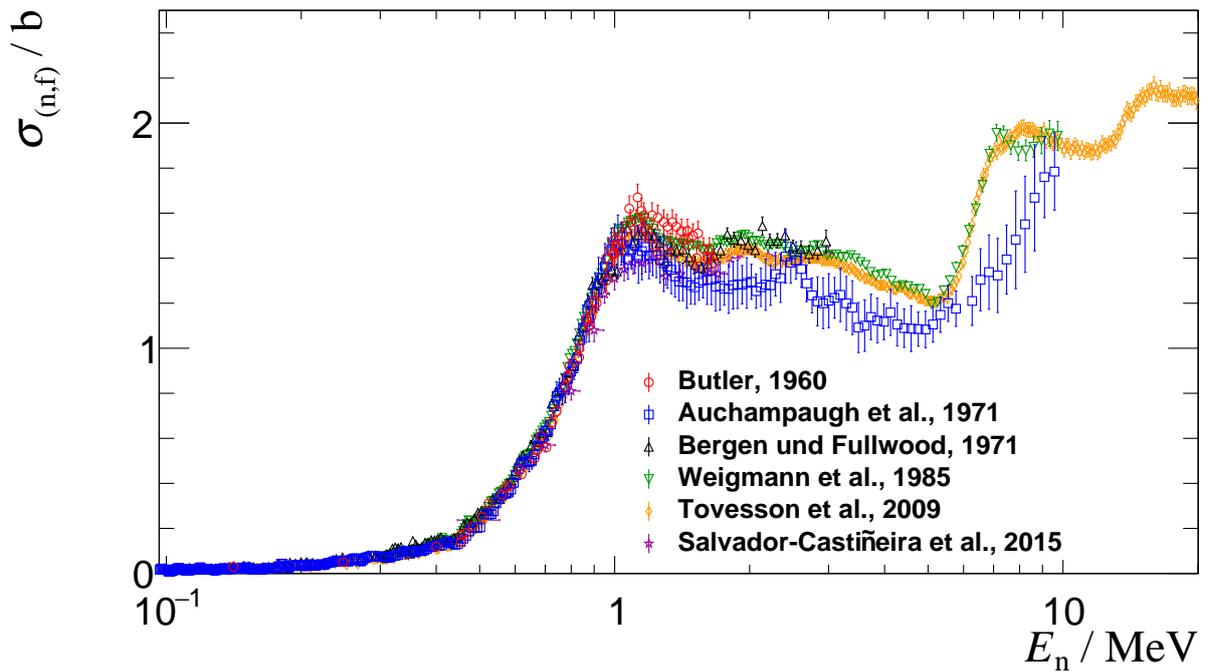
EXPLO ... nukleare Explosion  
 SPALL ... Spallation  
 Detektoren:  
 GLASD ... Silizium-Glasdetektor  
 GSZ ... Gas-Szintillationszähler  
 PPFIC ... Paralleleplatten Spaltionsationskammer  
 SD ... Silizium-Halbleiterdetektor  
 TFGIC ... Doppel-Frisch-Gitter Ionisationskammer

#### Art der Abschcheidung:

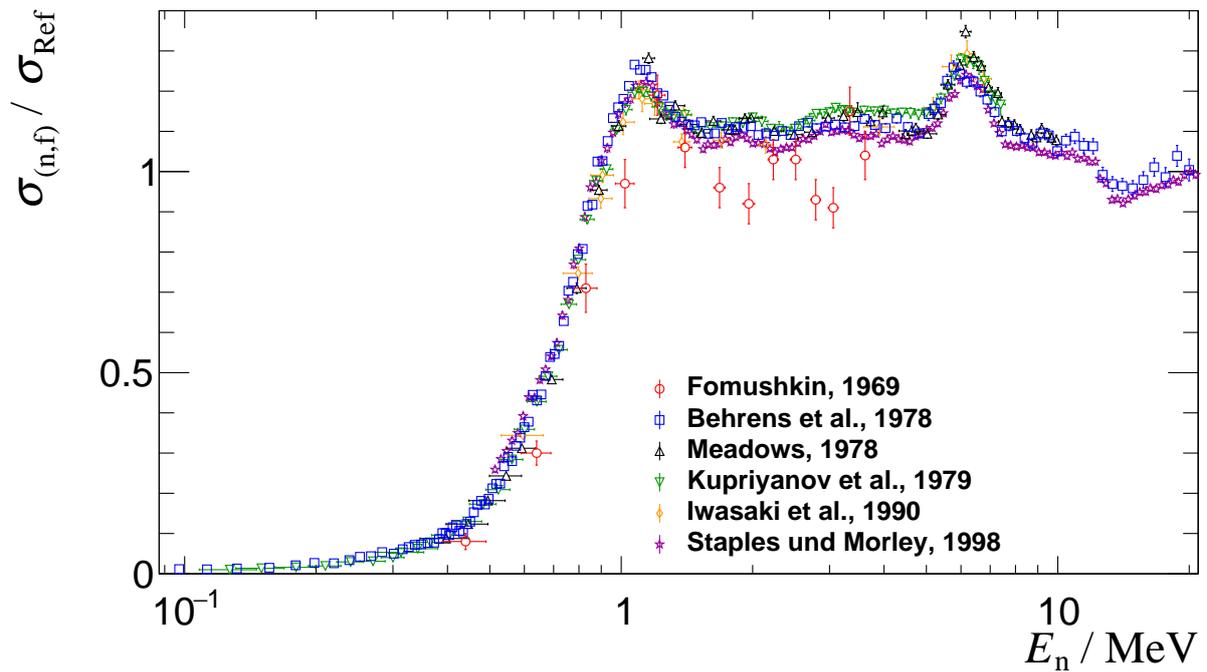
ED ... Elektrodeposition  
 PT ... Pinseltechnik  
 VD ... Vakuumdeposition

#### Bemerkungen:

\* ... gleiche Proben  
 † ... nur Massenverhältnis bestimmt  
 ‡ ... EXFOR-Update  
 § ... für  $E_n > 100 \text{ keV}$   
 § ... für  $10 \text{ keV} \leq E_n \leq 200 \text{ MeV}$



(a) absolut



(b) relativ

**Abbildung 1.3.1:** Experimentelle Daten der neutroneninduzierten Kernspaltung von  $^{242}\text{Pu}$ . Oben sind Einträge aus EXFOR gezeigt, deren Messwerte absolut in der Datenbank enthalten sind (obwohl alle relativ zu  $^{235}\text{U}(n,f)$  bestimmt wurden). Die Datensätze aus der unteren Grafik sind nur auf die Referenzreaktion  $^{235}\text{U}(n,f)$  normiert enthalten. Deutliche Diskrepanzen sind vor allem im Bereich des ersten Plateaus ( $1\text{ MeV} < E_n < 5\text{ MeV}$ ) und des zweiten Maximums ( $E_n \approx 8\text{ MeV}$ ) sichtbar.

werden. Die hier aufgeführten Informationen sind den jeweiligen Metadaten des Datensatzes (auch „Evaluated Nuclear Data File“, kurz ENDF) entnommen. Für weiterführende Informationen sei auf dieses und die zugehörige Referenz verwiesen.

### CENDL-3.1

Die „Chinese Evaluated Nuclear Data Library“ [Ge et al., 2011] wurde im Dezember 2009 in der Version 3.1 veröffentlicht. Sie ist damit von den fünf Hauptdatenbibliotheken die älteste. Der in ihr enthaltene neutroneninduzierte Spaltquerschnitt für  $^{242}\text{Pu}$  basiert auf einer Auswahl experimenteller EXFOR-Daten für Neutronenenergien oberhalb von 10 keV. Enthalten sind alle in Tabelle 1.3.1 aufgeführten absolut angegebenen Querschnitte. Ergänzt werden sie durch mehrere Messungen bei 14 MeV [Alkhazov et al., 1983, Arlt et al., 1981, Cancé und Grenier, 1983, Khan et al., 1980]. Die Messung von [Tovesson et al., 2009] war zum Zeitpunkt der Veröffentlichung noch nicht publiziert, sodass sie nicht Teil des Evaluierungsprozesses war.

### RUSFOND-2010

Die aktuelle russische Neutronendatenbank RUSFOND [Nikolaev und Koscheev, 2006] stammt aus dem Jahr 2010 und wurde vom Physikalisch-Energetischen-Institut A. I. Leipunsky in Obninsk (abgekürzt IPPE) zusammengestellt. Der enthaltene Plutonium-Spaltquerschnitt entspricht einer Rechnung im statistischen Modell nach [Ignatyuk et al., 1988], welche an die Messungen von [Behrens et al., 1978, Fomushkin und Gutnikova, 1969, Iwasaki et al., 1990, Kupriyanov et al., 1979, Meadows, 1978a] und [Kovalenko et al., 1985] angepasst wurde.

### JENDL-4.0

JENDL-4.0 [Shibata et al., 2011] ist die aktuelle Datenevaluierung Japans, wurde im Jahr 2010 veröffentlicht und zwei Jahre später ergänzt. Ausgewählte EXFOR-Daten<sup>6</sup> wurden hier mit dem GMA-Code [Chiba und Smith, 1991, Poenitz, 1981] analysiert und Eingabeparameter für den statistischen Modell-Code CCONE [Iwamoto, 2007] extrahiert. CCONE berücksichtigt Kovarianzen zwischen Experimentdaten und Modellparametern und gibt diese als Unsicherheit auf die evaluierten Daten aus.

---

<sup>6</sup>Dazu zählen alle in Tabelle 1.3.1 aufgeführten Messungen, die durch die Datenpunkte von [Arlt et al., 1981, Cancé und Grenier, 1983] und [Alkhazov et al., 1983] ergänzt wurden. Die Messwerte von [Tovesson et al., 2009] und [Salvador-Castiñeira et al., 2015] sind noch nicht Bestandteil dieser Evaluierung.

### ENDF/B-VII.1

Die US-amerikanische Kerndatenbank ENDF/B-VII.1 [Chadwick et al., 2011] wurde ein Jahr nach JENDL-4.0 veröffentlicht und basiert in großen Teilen auf der japanischen. Auch im neutroneninduzierten Spaltquerschnitt von  $^{242}\text{Pu}$  sind beide identisch.

### JEFF-3.2

JEFF ist die Abkürzung für die europäische „Joint European Fission Fusion“ Kerndatenevaluierung mit internationaler Beteiligung [OECD und NEA, 2014]. Sie steht unter der Schirmherrschaft der NEA. Die Version 3.2 ist derzeit die aktuellste Bibliothek und wurde im März 2014 publiziert. Der enthaltene Spaltquerschnitt wurde auch hier durch Anpassung einer statistischen Modellrechnung an experimentelle Daten von [Weigmann et al., 1985] für Energien im Bereich  $200 \text{ keV} < E_n < 9 \text{ MeV}$  und von [Behrens et al., 1978] für  $E_n > 9 \text{ MeV}$  gewonnen. Dabei wurden die Behrens-Daten auf den Wert der Weigmann-Messung bei  $E_n = 9 \text{ MeV}$  normiert. Unterhalb von 200 keV entspricht der Querschnitt den Werten von JENDL-3.2, dem Vorgänger der aktuellen japanischen Evaluierung.

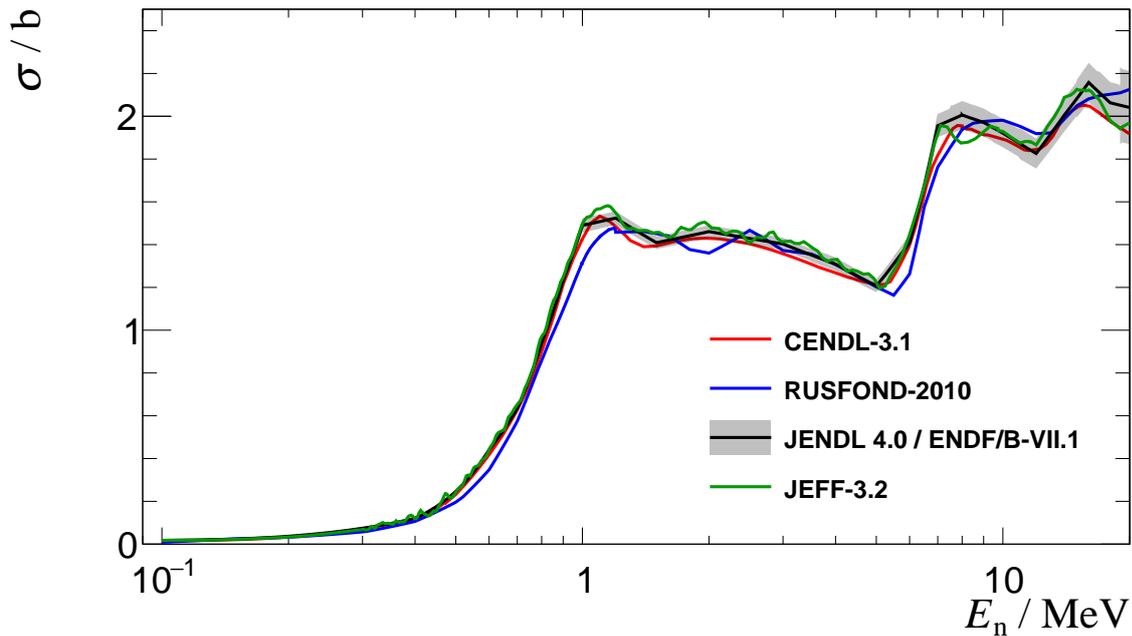
### TENDL-2015

Die „Talys Evaluated Nuclear Data Library“ [Koning et al., 2015] wird nicht zu den Hauptbibliotheken gezählt, ist aber vor allem für die Grundlagenphysik von Bedeutung. Ihre aktuell achte Version vom Dezember 2015 enthält für 7 Projektilarten jeweils mehr als 2.800 Zielisotope und ist damit die umfassendste Datenbank. Ein Großteil der enthaltenen Reaktionen ist derzeit experimentell nur schwer oder überhaupt nicht zugänglich, was TENDL vor allem für die nukleare Astrophysik interessant macht. Ihre Evaluierungen beruhen auf den Ergebnissen des Talys-Kernreaktionscodes [Koning und Rochman, 2012] und werden bei Bedarf durch Informationen aus anderen Datenbanken ergänzt. Auf die Grundlagen von Talys wird in Kapitel 2.2 ausführlicher eingegangen und die in dieser Arbeit gewonnenen Messwerte mit den Ergebnissen einer Talys-Rechnung verglichen.

### Diskussion

Die Resultate aus dem Vergleich der EXFOR-Daten spiegeln sich auch in Unterschieden der Kerndatenevaluierungen wider (siehe Abb. 1.4.1).

Im Bereich der Spaltschwelle sind alle Evaluierungen der Hauptbibliotheken in sehr guter Übereinstimmung. Nur RUSFOND-2010 ist in diesem Bereich (0,2-1,2 MeV) im Mittel etwa 11% geringer als die anderen Evaluierungen. Zudem enthält sie bei 1,2 MeV eine unphysikalische Stufe. JEFF-3.2 zeigt im gesamten dargestellten Energiebereich deutlich



**Abbildung 1.4.1:** Überblick über die tabellierte Wirkungsquerschnitte der fünf Hauptkerndatenevaluierungen für die neutroneninduzierte Spaltung von  $^{242}\text{Pu}$ . JENDL 4.0 und ENDF/B-VII.1 sind identisch.

mehr Strukturen im Verlauf ihres Spaltquerschnitts, was jedoch darauf zurückzuführen ist, dass sie innerhalb eines Energieintervalls immer nur auf einem experimentellen Datensatz beruht. Im Plateaubereich (1,2-5 MeV) zeigen alle Evaluierungen im Mittel Diskrepanzen im Bereich von bis zu 2,5% zu ihrem gewichtetem Mittel. Diese Diskrepanzen sind häufig auch größer als die von JENDL-4.0 und ENDF/B-VII.1 angegebenen Unsicherheiten. Für den sich anschließenden Bereich der Spaltung nach einfacher Neutronenemission sind vier der fünf Evaluierungen wieder in guter Übereinstimmung zueinander. Die Position der zweiten Spaltschwelle weicht bei der russischen Evaluierung ab, was eine mittlere Differenz von etwa 7% verursacht. Betrachtet man den gesamten Energiebereich, so variieren die Querschnitte der Evaluierungen untereinander um bis zu 24% (JEFF 3.2 @ 0,4125 MeV). Diese teils hohen Unterschiede legitimieren den Eintrag in der High Priority Request List und motivieren eine erneute Vermessung des  $^{242}\text{Pu}$ -Spaltquerschnitts mit schnellen Neutronen im Rahmen dieser Arbeit.

## 1.5 Gliederung dieser Arbeit

Nachdem dieses Kapitel in die Thematik der Gewinnung nuklearer Daten für P&T eingeführt und die weitere Arbeit motiviert hat, wird sich das nun folgende mit der theoretischen Beschreibung der Spaltwahrscheinlichkeit beschäftigen. Ergebnisse von Modellrechnungen mit den Kernreaktionscodes EMPIRE und Talys werden präsentiert und im Rahmen der bestehenden Kerndatenevaluierungen einer Diskussion unterzogen. Der sich anschließende dritte Abschnitt gibt einen Überblick über das Zentrum für Hochleistungsstrahlenquellen ELBE und der dazugehörigen Neutronenflugzeitanlage  $n$ ELBE, an welcher die experimentelle Bestimmung des  $^{242}\text{Pu}(n,f)$ -Spaltquerschnitts durchgeführt wurde. Die Entwicklung der dabei genutzten Spaltionsisationskammern wird im vierten Teil dieser Arbeit betrachtet. Es schließt sich das Kapitel „Experimente zur Spaltung von  $^{242}\text{Pu}$ “ an, in welchem die experimentelle Methodik und die Analyse der aufgenommenen Daten erläutert werden. Am Ende des Abschnitts werden die daraus abgeleiteten Ergebnisse vorgestellt und gemeinsam mit ihren Unsicherheiten im Kontext einiger ausgewählter Experimente diskutiert. Den Abschluss bildet die Zusammenfassung mit einem kurzen Ausblick auf zukünftige Messvorhaben.

## 2 Spaltwahrscheinlichkeit

*„We must be clear that when it comes to atoms, language can be used only as in poetry. The poet, too, is not nearly so concerned with describing facts as with creating images and establishing mental connections.“*

Niels Bohr in [Heisenberg, 1996, S. 46]

Die Kernspaltung gehört seit ihrer Entdeckung zu den am meisten untersuchten Kernreaktionen. Als kollektive Bewegung eines Vielteilchensystems mit großer Amplitude ist sie jedoch sehr schwer zu beschreiben. Ein Grund dafür ist, dass diese Fermionensysteme auch bei Kenntnis aller auftretenden Wechselwirkungen quantenmechanisch exakt unlösbar sind. Auf der anderen Seite ist die Anzahl der Nukleonen zu gering ( $\approx 230$ ), um diese Systeme vollständig klassisch zu behandeln.

### 2.1 Statistisches Modell und Compoundkern

Zur Beschreibung von Kernreaktionen werden deshalb statistische Modelle verwendet, die aufgrund der vielen Freiheitsgrade des quantenmechanischen Systems nur Aussagen über die Mittelwerte von Observablen machen. Entsprechend der Zeitskala, in der diese Kernreaktionen ablaufen, werden sie in direkte, Prä-Äquilibrium- und Compoundkern-Reaktionen (im Weiteren CN-Reaktionen) unterteilt<sup>1</sup>. Dabei laufen direkte Reaktionen am schnellsten ( $\approx 10^{-22}$  s) und CN-Reaktionen am langsamsten ( $\approx 10^{-18}$  s) ab. Reaktionen im Prä-Äquilibrium gruppieren sich zeitlich dazwischen ein. Die Dynamik des Spaltprozesses spielt im statistischen Modell nur eine untergeordnete Rolle. Deren Einfluss auf die Observablen der Spaltung werden kurz in Abschnitt A.3 des Anhangs erläutert. Der Fokus dieses Kapitels liegt auf einer Beschreibung der Spaltwahrscheinlichkeit und dem von ihr abgeleiteten Spaltquerschnitt.

Die neutroneninduzierte Spaltung ist ein gutes Beispiel für eine Compoundkern-Reaktion, bei der die Energie des Projektils gleichmäßig auf alle Nukleonen verteilt wird. In erster

---

<sup>1</sup>Eine vergleichbare Einteilung kann vorgenommen werden, falls man die Anzahl der intranuklearen Wechselwirkungen während der Kernreaktion betrachtet. Dort reicht man von 1-2 bei direkten Reaktionen bis zu sehr vielen für CN-Reaktionen.

Näherung spielt dabei die Art und Weise, auf die der CN gebildet wurde, für den anschließenden Zerfall keine Rolle (Bohrsche Hypothese [Bohr, 1936]). Diese Annahme führt formal zur Hauser-Feshbach-Gleichung [Hauser und Feshbach, 1952]:

$$\sigma_{ab} = \underbrace{\sum_{J,\pi} \sigma_a^{\text{CN}}(E^*, J, \pi)}_{\text{Bohrsche Hypothese}} \cdot \underbrace{\frac{\langle \Gamma_b(E^*, J, \pi) \rangle}{\sum_c \langle \Gamma_c(E^*, J, \pi) \rangle}}_{=P_b}$$

$$\langle \sigma_{ab} \rangle = \frac{\pi}{k_a^2} T_a^{J\pi}(E^*) \cdot \frac{T_b^{J\pi}(E^*)}{\sum_c T_c^{J\pi}(E^*)} \quad \text{Hauser-Feshbach-Gleichung}$$

Hierbei ist  $\sigma_{ab}$  der Wirkungsquerschnitt für die Kernreaktion mit dem Eingangskanal a, welcher in den Ausgangskanal b zerfällt.  $\sigma_a^{\text{CN}}$  ist dann der Wirkungsquerschnitt für die Bildung des Compoundkerns. Der rechte Faktor ( $P_b$ ) steht für die Wahrscheinlichkeit dafür, dass dieser nach b zerfällt. Eingangs- und Ausgangskanal werden dabei über die Anregungsenergie  $E^*$ , den Gesamtdrehimpuls  $J$  und die Parität  $\pi$  charakterisiert. Die Größe  $\Gamma$  wird Reaktionsbreite genannt und ist ein Maß für die Zerfallswahrscheinlichkeit. Zur Berechnung der Transmissionskoeffizienten  $T$  in der Hauser-Feshbach-Gleichung geht ein mittleres Kernpotential ein, welches über das optische Modell<sup>2</sup> [Feshbach et al., 1954] mit dem Betrag des einfallenden Wellenzahlvektors  $k_a$  berechnet werden kann. Damit beschreiben die  $T$ s aber die Bildungswahrscheinlichkeit eines Einteilchenzustands, welcher nur die Berechnung gemittelter Querschnitte erlaubt (vgl. [Mayer-Kuckuk, 2002, S. 257]). Die Hauser-Feshbach-Gleichung wurde hier in stark vereinfachter Form ohne Drehimpulskopplung wiedergegeben. Um alle experimentellen Resultate zu beschreiben, sind weiterhin Korrekturen<sup>3</sup> zur Kompensation der Abweichungen von der Bohrschen Hypothese notwendig (z.B. über die Moldauer-Methode oder das Gaußsche-Orthogonal-Ensemble (GOE)-Dreifachintegral; siehe dazu [Hilaire et al., 2003]). Die Anzahl der Ausgangskanäle  $c$  bei einer CN-Reaktion ist abhängig von den Observablen  $E^*$ ,  $J$  und  $\pi$  und wächst mit der Energie des einfallenden Teilchens. Bei der neutroneninduzierten Spaltung ist für Energien unterhalb von  $\approx 20$  MeV jedoch nur die Neutronenemission der hauptsächlich konkurrierende Prozess.

<sup>2</sup>Das optische Modell verwendet ein Potential mit imaginärem Anteil zur Beschreibung der Absorption einfallender Teilchen. Absorption und Streuung von Licht werden in der Optik ebenfalls durch komplexwertige Potentiale beschrieben. Aufgrund dieser Analogie erhielt dieses Modell seinen Namen.

<sup>3</sup>Die sogenannten „Width Fluctuation Corrections“ rühren daher, dass die Annahme von zufälligen Phasen der Wellenfunktion der CN-Zustände nicht richtig ist. Bei der elastischen Streuung kommt es zu quantenmechanischen Interferenzeffekten zwischen einfallender und auslaufender Teilchenwelle, was den elastischen Streuquerschnitt verstärkt.

Die Zerfallsbreite  $\Gamma_n$  für diesen kann nach [Vandenbosch und Huizenga, 1973] über

$$\Gamma_n = \frac{D}{2\pi} \frac{2m_n g R^2}{\hbar^2} \int_0^{E^* - S_n} \varepsilon \rho(E^* - S_n - \varepsilon) d\varepsilon \quad (2.1.1)$$

bestimmt werden. Dabei beschreibt diese Gleichung die Emission eines Neutrons mit Masse  $m_n$  und kinetischer Energie  $\varepsilon$  im Abstand  $R = r_0 A^{\frac{1}{3}}$  vom Compoundkernmittelpunkt tangential zur Kernoberfläche. Die Niveaudichte des verbleibenden Kerns  $\rho(E^* - S_n - \varepsilon)$  ergibt sich dann unter Berücksichtigung der Energiebilanz. Ausgehend von der Anregungsenergie des Compoundkerns  $E^*$  müssen die Neutronenseparationsenergie  $S_n$  und die kinetische Energie des Neutrons abgezogen und im Anschluss über alle möglichen Endzustände integriert werden.  $D$  steht hier für den Niveauabstand des Compoundkerns mit festgelegtem Spin und Parität. Der gyromagnetische Faktor  $g$  berücksichtigt in (2.1.1) die Spinartung des Neutrons.

Für die Zerfallsbreite des Spaltkanals lässt sich ein ganz ähnlicher Zusammenhang angeben

$$\Gamma_f = \frac{D}{2\pi} \int_0^{E^* - V_f} \rho(E^* - V_f - K) dK. \quad (2.1.2)$$

Integriert wird in diesem Fall über die kinetische Energie  $K$  am Sattelpunkt von 0 bis zur Differenz aus Anregungsenergie und Höhe der Spaltbarriere  $V_f$ .

Bei Vernachlässigung aller weiteren Reaktionen kann die Bohrsche Hypothese so zu

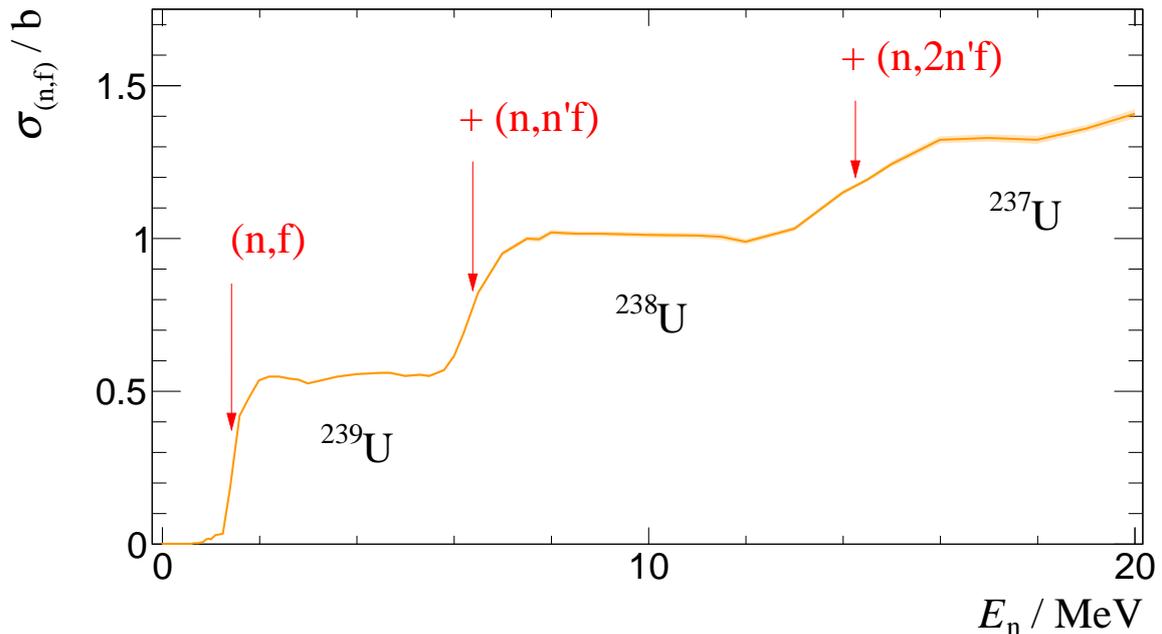
$$\sigma_f = \sigma^{\text{CN}} \frac{\Gamma_f}{\Gamma_f + \Gamma_n} \quad (2.1.3)$$

vereinfacht werden. Der Spaltquerschnitt  $\sigma_f$  ist bei bekanntem Compoundkernbildungsquerschnitt  $\sigma^{\text{CN}}$  dann proportional zum Verhältnis von Spalt- und Neutronenzerfallsbreite. Unter Nutzung von Gleichung (2.1.1) und (2.1.2) lässt sich dieses Verhältnis wie folgt angeben:

$$\frac{\Gamma_f}{\Gamma_n} = \frac{\hbar^2}{2m_n r_0^2 A^{\frac{2}{3}} g} \frac{\int_0^{E^* - V_f} \rho(E^* - V_f - K) dK}{\int_0^{E^* - S_n} \varepsilon \rho(E^* - S_n - \varepsilon) d\varepsilon}. \quad (2.1.4)$$

Nimmt man nun vereinfacht an, dass

- das Verhältnis der Reaktionsbreiten von Spaltung und Neutronenemission ( $\Gamma_f/\Gamma_n$ ) annähernd konstant ist,
- die Öffnung neuer Reaktionskanäle energetisch scharf verläuft und
- alle Neutronenbindungsenergien gleich sind,



**Abbildung 2.1.1:** Spaltreferenzquerschnitt von  $^{238}\text{U}+n$  [Badikov et al., 2007]. Der Reaktionsquerschnitt zeigt den typischen stufenförmigen Verlauf von g-u-CN. Die Pfeile markieren die Spaltschwellen für Spaltung ohne vorherige Neutronenemission (n,f) und nach einfacher und doppelter Emission (n,n'f) eines Neutrons. Die in den Bereichen jeweils spaltenden Isotope sind ebenfalls angegeben.

so ergibt sich für den Spaltquerschnitt ein ideal stufenförmiger Verlauf. Dieses Verhalten kann in etwa bei CN mit gerader Protonen- und ungerader Neutronenzahl (g-u-Kern) beobachtet werden. Am Beispiel von  $^{238}\text{U}+n$  ist das in Abbildung 2.1.1 zu sehen.

Die Stufenform kommt dadurch zustande, da bei hochangeregten CN die Anregungsenergie des Tochterkerns nach multipler Neutronenemission immer noch so hoch ist, dass dieser Kern spalten kann. Die Spaltung nach einfacher, doppelter ... usw. Neutronenemission wird im Folgenden als „second, third ... etc. chance fission“ bezeichnet. Spaltung ohne vorherige Emission eines Neutrons wird auch „first chance fission“ genannt.

Thermisch spaltbare Isotope (Kerne, deren CN eine gerade Neutronenzahl aufweist) passen nicht vollständig in dieses Bild. Zwar kann der grundsätzliche Verlauf ihres Wirkungsquerschnitts auf ähnliche Weise erklärt werden, jedoch wird für solche Kerne die second chance fission energetisch bereits vor der Emission eines zweiten Neutrons möglich, was einen Abfall des Querschnitts auf dem ersten Plateau zur Folge hat [Wilets, 1964]. Da diese Isotope keine Spaltschwelle besitzen, folgt ihr Querschnitt für Energien unterhalb von 1 MeV dem charakteristischen  $1/v$ -Verhalten, wobei  $v$  für die Geschwindigkeit des einfallenden Neutrons steht.

Die Entwicklung des Kerns vom Grundzustand bis zum Zerreipunkt wird mageblich durch die Niveaudichte oberhalb einer multidimensionalen Potentiallandschaft bestimmt [Karpov et al., 2008, Randrup und Mller, 2011]. Die Eigenschaften der Spaltfragmente und der bei der Spaltung emittierten Teilchen hngen davon ab, welchen Pfad der Compoundkern in dieser Landschaft nimmt. Man spricht in diesem Fall von sogenannten Spaltmodi oder Brosa-Modes [Brosa et al., 1986]. Durch Brosa-Modes lassen sich symmetrische und asymmetrische Anteile in den Massen- und Energieverteilungen der Spaltfragmente erklren.

Fr die Berechnung des Potentials deformierter Kerne werden hauptschlich zwei Methoden verwendet. Hartree-Fock oder Hartree-Fock-Bogoliubov [Goriely et al., 2009] bilden die erste Gruppe selbstkonsistenter Anstze. Die zweite Methode verwendet Parametrisierungen, um die komplexe Entwicklung der ueren Form des spaltenden Kernes zu beschreiben. Vertreter dieser Gruppe sind die Nilsson-, Lawrence- und Cassinian-Parametrisierung (zusammengefasst z.B. in [Vandenbosch und Huizenga, 1973]).

Bei der Berechnung von Spaltquerschnitten wird jedoch oft auf einen weiteren Vertreter der letzten Gruppe zurckgegriffen. Der Potentialverlauf in Abhngigkeit eines Deformationsparameters  $\beta$  wird dort von eindimensionalen Parabeln beschrieben. Die Tunnelwahrscheinlichkeit  $T_{\text{HW}}$  durch diese Potentialbarrieren kann im Rahmen der „Transition state“-Theorie von [Hill und Wheeler, 1953] berechnet werden.

$$T_{\text{HW}}(E) = \frac{1}{1 + \exp\left(-2\pi \frac{E - V_f}{\hbar\omega}\right)} \quad (2.1.5)$$

Die Hhe des Potentialwalls ist hier wieder mit  $V_f$  und die Krmmung mit  $\hbar\omega$  parametrisiert. Mit Gleichung (2.1.5) lsst sich der Transmissionskoeffizient  $T_f$  fr Spaltung in der Hauser-Feshbach-Gleichung bestimmen:

$$T_f(E, J, \pi) = \sum_{d(J, \pi)} T_{\text{HW}}(E - \varepsilon_d) + \int_{E_c}^{E+S_n} \rho(\varepsilon, J, \pi) T_{\text{HW}}(E - \varepsilon) d\varepsilon \quad (2.1.6)$$

Die  $\varepsilon$  entsprechen dabei den Energien der von Hill und Wheeler eingefhrten bergangszustnde oberhalb der Spaltbarriere. Bis zu einer Grenzenergie  $E_c$  werden diese Zustnde als diskret betrachtet. Danach knnen sie experimentell nicht mehr aufgelst werden und werden dann ber die Zustandsdichte am Sattelpunkt  $\rho(\varepsilon, J, \pi)$  beschrieben.

Unter der Bercksichtigung von Schalen- und Paarungseffekten kommt es bei vielen Isotopen zur Ausprgung weiterer Potentialwlle. Die Potentiale in Kernmodellrechnungen weisen aber selten mehr als drei Potentialbarrieren auf. Die entkoppelten Parabeln werden

in diesem Fall stetig glatt aneinander gefügt [Sin et al., 2011]. Im Falle einer doppelhöckrigen Potentiallandschaft kann obiger Ausdruck für die Transmissionskoeffizienten wie folgt erweitert werden:

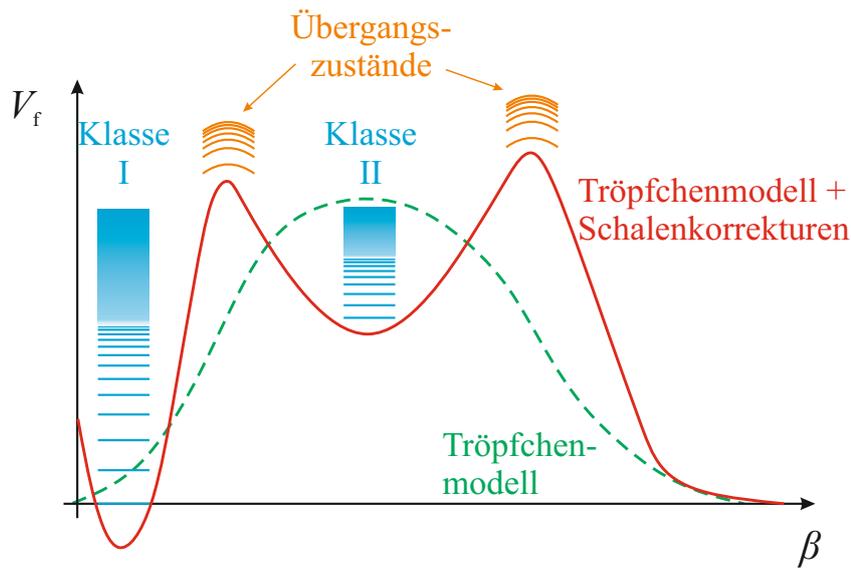
$$T_{f,2} = \frac{T_{f,A}T_{f,B}}{T_{f,A} + T_{f,B}} \quad (2.1.7)$$

In Abbildung 2.1.2 ist der Einfluss der Schalenkorrekturen einmal verdeutlicht. Die doppelhöckrige Struktur entspricht dem typischen Potentialverlauf von Actinoidenkernen. Übergangszustände oberhalb der Potentialwälle sind in Orange dargestellt. Die Tunnelwahrscheinlichkeit in diesen Zuständen ist erhöht, was zur Ausbildung von Resonanzen im Spaltquerschnitt führt (siehe Abb. 2.1.3).

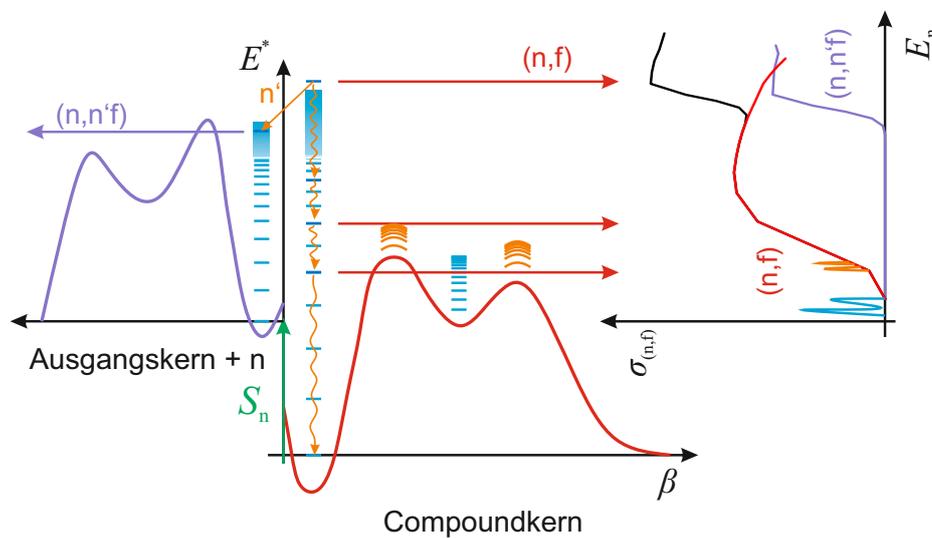
Als Folge zusätzlicher Spaltbarrieren kommt es in den Tälern zwischen zwei Potentialwällen zur Ausprägung weiterer quantenmechanischer Niveaus (in Blau). Entsprechend ihrer Lage im ersten oder zweiten Minimum werden sie Klasse I- oder II-Zustände genannt. Auch in diesen Niveaus ist die Tunnelwahrscheinlichkeit erhöht, wodurch energetisch tiefer liegende Resonanzen erklärt werden können. Bei der Spaltung mit schnellen Neutronen ist die Niveaudichte beider Zustandsarten jedoch so hoch, dass einzelne Resonanzen nicht mehr aufgelöst werden können.

Ein gutes Modell hilft die im Kern ablaufenden Prozesse besser zu verstehen und ermöglicht Vorhersagen über die Eigenschaften der an der Reaktion beteiligten Teilchen für Energien und Isotope, die sich den derzeitigen experimentellen Möglichkeiten noch entziehen. Unbedingt notwendig ist jedoch, dass es bereits bestehende Messdaten reproduziert.

Der europäische Reaktions-Code Talys [Hilaire et al., 2007] und sein amerikanisches Pendant EMPIRE [Herman et al., 2007] basieren beide auf den eben vorgestellten Modellen. In der Beschreibung der Spaltbarrieren und der Kernzustandsdichte am Sattelpunkt unterscheiden sie sich jedoch. Beide Größen haben aber einen wesentlichen Einfluss auf die Ergebnisse. Im folgenden Abschnitt wird die neutroneninduzierte Spaltung von  $^{242}\text{Pu}$  mit diesen zwei Reaktions-Codes untersucht und die Ergebnisse werden gegenübergestellt.



**Abbildung 2.1.2:** Schematische Darstellung des Kernpotentials eines typischen Actinoidenkerns in Abhängigkeit von der Deformation  $\beta$ . Der Verlauf des Potentials aus dem Tröpfchenmodell ist in Grün dargestellt. Unter Berücksichtigung von Schaleneffekten (rot) ergeben sich mehrere Maxima. Quantenmechanische Vibrations- und Rotationszustände befinden sich sowohl in den Potentialtälern (Klasse I-, II-Zustände, in Hellblau) als auch auf den Potentialbarrieren (Übergangszustände, in Orange).



**Abbildung 2.1.3:** Energieschema der neutroneninduzierten Spaltung. Dargestellt sind die Kernpotentiale des Ausgangs- und des Compoundkerns. Beim Einfang eines Neutrons mit kinetischer Energie  $E_n$  beträgt die Anregungsenergie des CN  $E^* \cong S_n + E_n$  (der Rückstoß kann vernachlässigt werden).  $S_n$  bezeichnet hierbei seine Neutronenseparationsenergie. Werden Übergangs- oder Klasse I- oder II-Zustände besetzt, so kommt es im Spaltquerschnitt (rechts) zur Ausprägung von Resonanzen. Bei sehr hohen Energien ( $E_n > 5 \text{ MeV}$ ) kann Spaltung nach Neutronenemission stattfinden (auch „Multichance-Fission“ genannt,  $(n, xn'f)$ ).

## 2.2 Kernreaktionsrechnungen

### Beschreibung der Spaltbarrieren

Sowohl in Talys 1.8, als auch in EMPIRE 3.2 besteht die Möglichkeit, zwischen unterschiedlichen Methoden zur Beschreibung der Spaltbarrieren zu wählen. EMPIRE bietet dem Nutzer dafür:

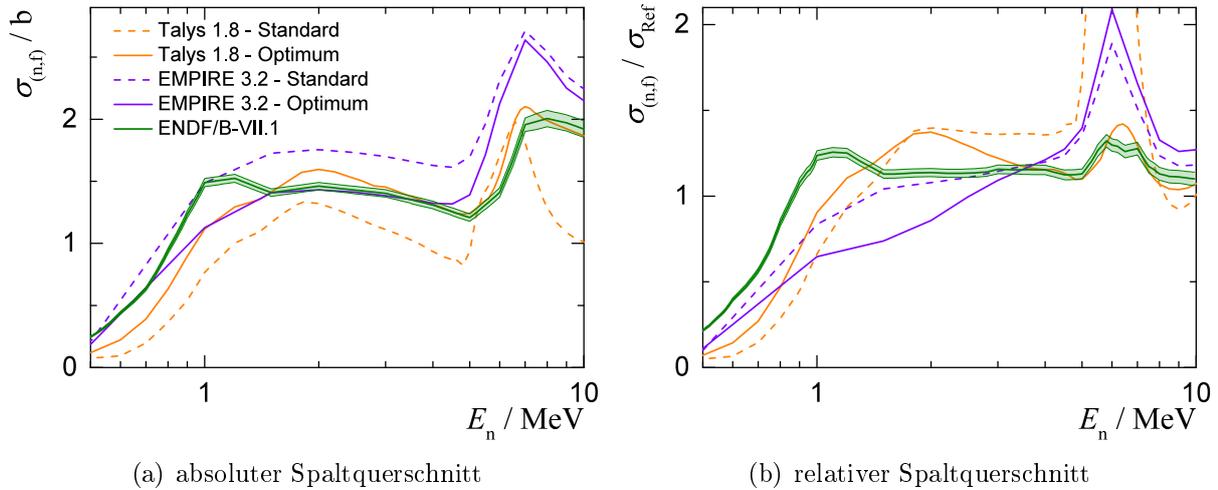
- empirisch ermittelte Barrieren von [Smirenkin, 1993],
- durch die Hartree-Fock-Bogoliubov (HFB) Mean-Field-Theorie a priori berechnete [Goriely et al., 2009] oder
- eigens implementierte parabolische Spaltbarrieren.

Talys verwendet ebenfalls experimentell bestimmte Spaltbarrieren aus der RIPL-3-Datenbank [Capote et al., 2009] oder durch drei unterschiedliche Modelle [Cohen et al., 1974, Mamdouh et al., 2001, Sierk, 1986] berechnete. Über entsprechende Funktionen im sogenannten Input-File können die Spaltbarrieren ebenfalls in Höhe und Breite modifiziert werden. Als Alternative zur Bestimmung der Transmissionskoeffizienten nach Hill und Wheeler bieten beide Codes auch die sogenannte Wentzel-Kramers-Brillouin (WKB)-Näherung [Sin et al., 2006] an.

Die beste Übereinstimmung mit ENDF/B-VII.1 konnten sowohl für Talys, als auch für EMPIRE mit selbst implementierten Spaltbarrieren erzielt werden („Optimum“ in Abb. 2.2.1). Für Talys bildeten dabei die „Adjusted Input-Parameter“ der TENDL-2015 Datenbank die Grundlage. In EMPIRE wurden sie empirisch ermittelt. Dass mit den berechneten Talys-Daten nicht die gleiche Übereinstimmung wie mit den TENDL-2015-Daten erreicht wurde, liegt daran, dass letztere zusätzlich noch auf experimentelle Datenpunkte normiert wurden [Koning, 2015].

### Beschreibung der Kernzustandsdichten am Sattelpunkt

Für die Beschreibung der Kernzustandsdichte sind in EMPIRE zwei Modelle implementiert. Bei den hier präsentierten Rechnungen wurde das „Enhanced Generalized Superfluid Model“ verwendet. Das andere Modell benutzt HFB-Niveaudichten mit einem kombinatorischen Ansatz, was in der Standardeinstellung auch von Talys verwendet wird. Findet Talys für das entsprechende Isotop keine Einträge in seiner Strukturdatenbank, so greift es auf das Fermi-Gas-Modell zurück.



**Abbildung 2.2.1:** Berechnung des Spaltquerschnitts von  $^{242}\text{Pu}(n,f)$  mit Talys 1.8 und EMPIRE 3.2. Den größten Einfluss auf die Ergebnisse dieser Rechnungen haben für die beteiligten Isotope die verwendeten Spaltbarrieren und Zustandsdichten am Sattelpunkt. Im Vergleich zur ENDF/B-VII.1-Evaluierung zeigen sich teilweise erhebliche Unterschiede. Der relative Querschnitt (b) gibt das Verhältnis aus  $^{242}\text{Pu}$ -Spaltquerschnitt und Referenzquerschnitt  $\sigma_{\text{Ref}} = \sigma_{(n,f)}^{235\text{U}}$  an.

## Diskussion

Sowohl Talys 1.8 als auch EMPIRE 3.2 zeigen unter Verwendung ihrer Standard-Parameter im betrachteten Energiebereich ( $0,5 \text{ MeV} \leq E_n \leq 10 \text{ MeV}$ ) große Abweichungen vom ENDF/B-VII.1-Datensatz. Unter Verwendung eines jeweils optimierten Parametersatzes wird für beide Codes die Übereinstimmung vor allem auf dem ersten Plateau verbessert. Während Talys den Querschnitt auch im Bereich der second chance fission noch gut beschreibt, weicht EMPIRE dort von den evaluierten Daten ab. Für den relativen Spaltquerschnitt (normiert auf den Neutronen-Referenzquerschnitt von  $^{235}\text{U}$ ) werden die Abweichungen noch einmal größer, was auf Diskrepanzen im  $^{235}\text{U}$ -Spaltquerschnitt schließen lässt. Auch hier gelingt die bessere Beschreibung mit der optimierten Talysrechnung, die oberhalb von 3 MeV in guter Übereinstimmung mit ENDF/B-VII.1 ist. Ursache für die Abweichungen unterhalb von 1,5 MeV scheint eine fehlerhafte Spaltbarriere zu sein.

Die Rechnungen zeigen eindrucksvoll, dass eine konsistente Vorhersage von Spaltquerschnitten sehr anspruchsvoll ist. Die beiden bekanntesten Reaktionscodes reproduzieren die vorliegenden Messwerte nur unzureichend mit ihren Standardeinstellungen. Genauere experimentelle Daten können dazu beitragen, die derzeitigen Modelle weiter zu verbessern.



## 3 Die Neutronenflugzeitanlage *n*ELBE

*„It has been shown by Bothe and others that beryllium when bombarded by  $\alpha$ -particles of polonium emits a radiation of great penetrating power . . .“*

Sir James [Chadwick](#) [1932]

Seit ihrer Entdeckung durch Sir James Chadwick im Jahr 1932 haben Neutronen einen unvergleichlichen Siegeszug in vielen Bereichen der Physik und Materialwissenschaften vollzogen. Ihre Eigenschaften machen sie zu idealen Sonden in vielen Experimenten. Ihr heute nutzbarer Energiebereich umfasst beinahe 16 Größenordnungen. Die daraus resultierenden de-Broglie-Wellenlängen erstrecken sich von etwa 100 nm über Kristallgitterabstände ( $\approx 0,04$  nm) bis zu Nukleonendurchmessern (1 fm).

Die Anwendungsgebiete schneller Neutronen ( $E_{\text{kin}} \gtrsim 100$  keV) reichen von der reinen Grundlagenforschung bis zur nuklearen Astrophysik, von den Materialwissenschaften und der Energiegewinnung (Fusion und Spaltung) über den Heimatschutz bis zur Krebstherapie. Ein Beispiel für diese enorme Vielseitigkeit ist Ref. [[Büffler, 2012](#)] zu entnehmen.

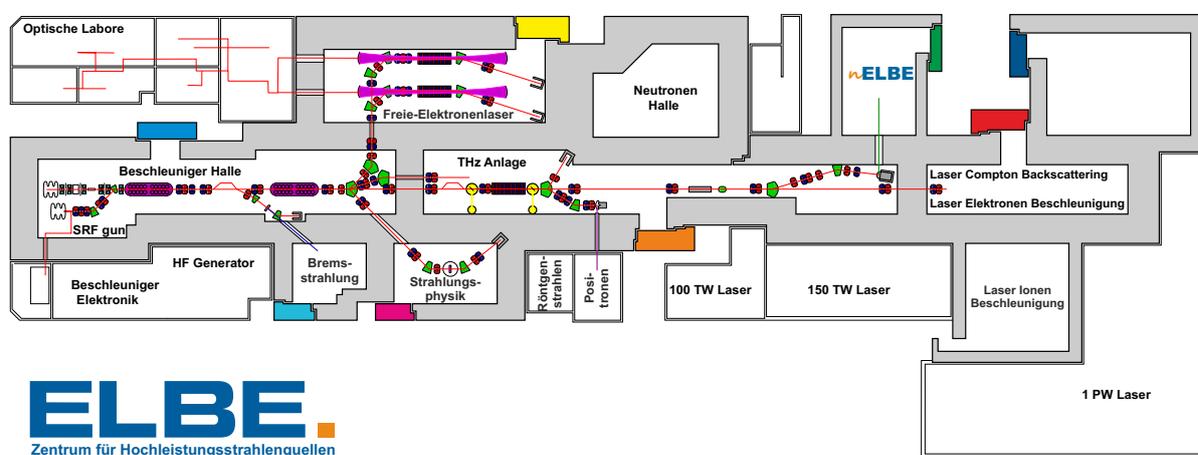
Quellen für schnelle Neutronen werden üblicherweise in quasi-monoenergetische und „weiße“ Quellen unterteilt. Erstere produzieren hochintensive Neutronenfelder bei ausgewählten Energien. Letztere erzeugen ein kontinuierliches Spektrum in einem definierten Energiebereich. Während bei quasi-monoenergetischen Quellen die Neutronenenergie über die Reaktionskinematik festgelegt ist, wird die Energie der Neutronen an weißen Quellen hauptsächlich über deren Flugzeit bestimmt.

Dieses Kapitel gibt einen kurzen Überblick über die Neutronenflugzeitanlage *n*ELBE, an welcher die für diese Arbeit relevanten Untersuchungen durchgeführt wurden.

### **ELBE-Zentrum für Hochleistungsstrahlenquellen**

Am ELBE-Zentrum für Hochleistungsstrahlenquellen des Helmholtz-Zentrums Dresden-Rossendorf wurde im August 2014 die neu errichtete Neutronenflugzeitanlage *n*ELBE in Betrieb genommen. ELBE ist dabei die Abkürzung für den supraleitenden **E**lektronen **L**inearbeschleuniger für Strahlen hoher **B**rillanz und niedriger **E**mittanz - dem Herzstück der gesamten Anlage. Elektronen mit Energien bis zu 40 MeV, Strömen bis zu 1,6 mA

und variablen Wiederholraten von 1 Hz bis 26 MHz werden hier vorrangig für die Erzeugung von Sekundärstrahlen verwendet. Neben Brems- ( $\gamma$ ELBE) und Terahertz-Strahlung (TELBE) sowie Infrarot-FEL-Licht (FELBE) umfasst das Spektrum auch Positronen ( $p$ ELBE) und Neutronen ( $n$ ELBE). Der primäre Elektronenstrahl wird unter anderem für Detektortests mit hoher Zeitauflösung, für radiobiologische Untersuchungen und für Bestrahlungen von Materialien verwendet. Hochenergetische Laser mit Leistungen im Tera- und Petawattbereich sind Bestandteil der neuen ELBE-Erweiterung. Hier werden die Laser-Teilchenbeschleunigung von Elektronen und Ionen und die Thompson-Streuung am Elektronenstrahl [Jochmann et al., 2013] untersucht. In Abbildung 3.0.1 ist ein Grundriss des



**Abbildung 3.0.1:** Grundriss des ELBE-Zentrums für Hochleistungsstrahlenquellen.

gesamten Zentrums abgebildet. Typische Eigenschaften der Sekundärstrahlen samt verwendeter Elektronenstrahlparameter sind in Tabelle 3.0.1 zusammengefasst.

**Tabelle 3.0.1:** Charakteristische Parameter des ELBE-Beschleunigers und seiner Sekundärstrahlen.

Parameter	$\gamma$ ELBE	FELBE	TELBE	$p$ ELBE	$n$ ELBE
Sekundärstrahlenergie bzw. Wellenlänge	<16 MeV	4 $\mu$ m- 250 $\mu$ m	0,1 mm- 3 mm	0,5 keV- 20 keV	10 keV- 20 MeV
Elektronenstrahlenergie / MeV	6–16	12–40	30	30	30
Max. Bunchladung / pC	77	120	120	120	70
Max. mittlerer Strahlstrom / $\mu$ A	1000	1600	12	200	$\approx$ 0–30
Mikropulslänge / ps	2	1–25	<1	2	2
Mikropulsfrequenz / MHz	13 / 26	13	0,1	1,625	0,1–0,4

### *n*ELBE

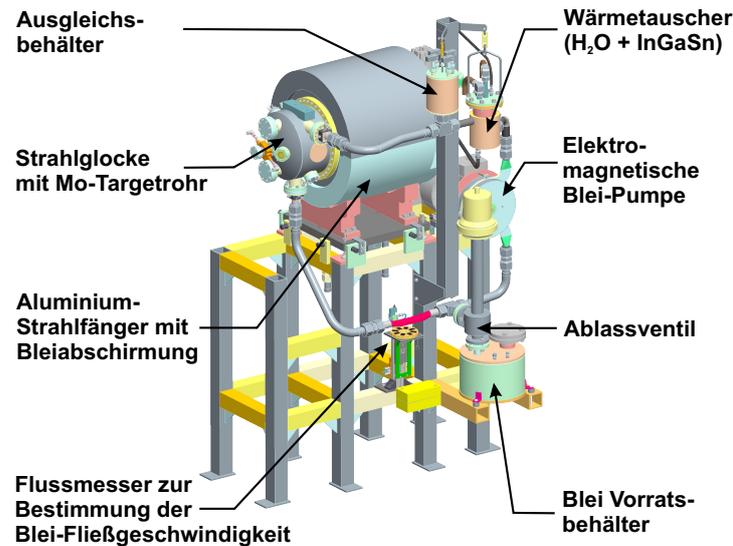
*n*ELBE ist die derzeit einzige Neutronenflugzeitanlage an einem supraleitenden Elektronenbeschleuniger. Ihre Neutronen werden über photo-nukleare Reaktionen an flüssigem Blei erzeugt. Der ELBE-Elektronenstrahl wird dazu auf ein Molybdänrohr mit rhombischem Querschnitt (Kantenlänge 11,2 mm) gelenkt, welches Teil eines Kreislaufes ist, in dem das Blei zirkuliert. Die dort eindringenden Elektronen werden abgebremst und emittieren dabei Bremsstrahlung. Über  $(\gamma, n)$ -Reaktionen an den Blei-Kernen erzeugt diese dann Neutronen. Die hohe Kernmasse des Bleis in Verbindung mit der kompakten Bauweise der Quelle minimieren dabei die hier unerwünschte Abbremsung schneller Neutronen.

Die von den Elektronen eingebrachte thermische Leistung von etwa 1 kW würde jeden Festkörper vergleichbarer Größe innerhalb kürzester Zeit zum Schmelzen bringen. Im flüssigen Zustand kann das Blei die zugeführte Wärme vom Interaktionspunkt wegtransportieren und in einem Wärmetauscher wieder abgeben.

Ein Foto der Photoneutronenquelle wird in Abbildung 3.0.2 gezeigt. Ihr Aufbau kann der Modellzeichnung in Abbildung 3.0.3 entnommen werden. Dort sind alle wesentlichen Komponenten beschriftet und farblich dargestellt. Weitere Informationen und Details zur *n*ELBE-Neutronenquelle sind Referenz [Altstadt et al., 2007] zu entnehmen.



**Abbildung 3.0.2:** Foto der neuen Photoneutronenquelle. Der auf die Quelle auftreffende Elektronenstrahl ist mit einem roten Pfeil dargestellt. Zur Abschirmung der erzeugten Dosisleistung ist die Strahlglöcke, in welcher sich das mit flüssigem Blei gefüllte Molybdänröhrchen befindet, mit blauen Bleisteinen ummantelt.

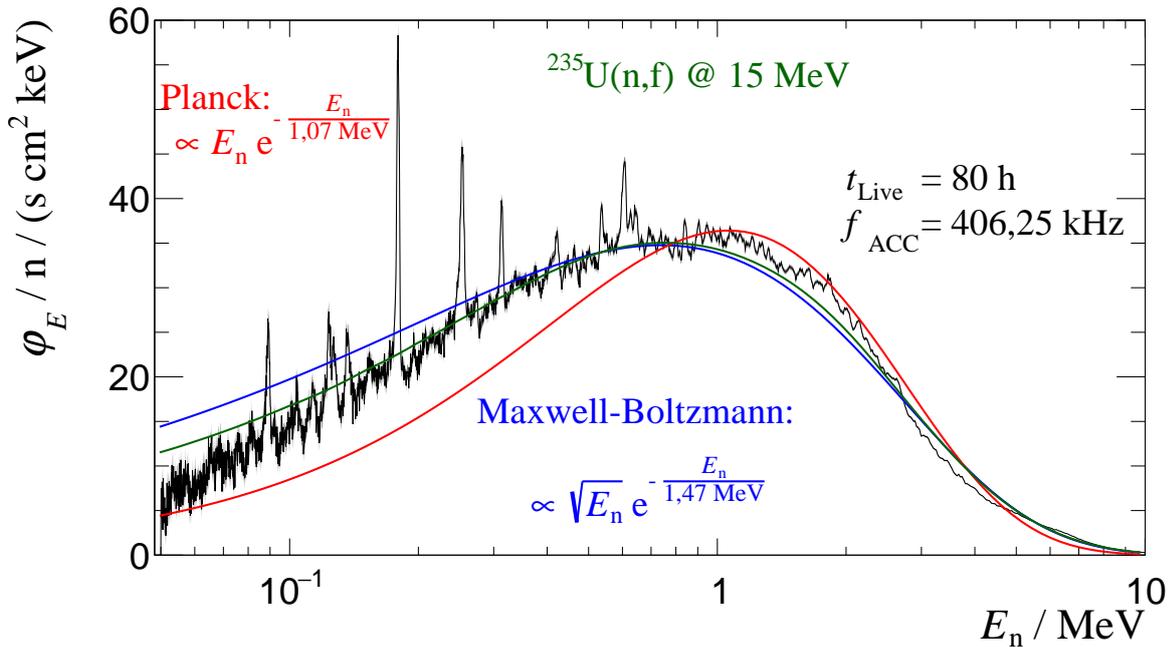


**Abbildung 3.0.3:** Computergeneriertes Design der neuen *n*ELBE-Photoneutronenquelle. Die Hauptbestandteile des Flüssigbleikreislaufes sind farblich hervorgehoben und beschriftet. Der ELBE-Strahl trifft die Quelle von links kommend.

Die so erzeugten Neutronen verlassen die Quelle isotrop. Ihr Energiespektrum wurde mit einer  $^{235}\text{U}$ -Spaltkammer bestimmt (siehe Kapitel 5) und wird in Abbildung 3.0.4 mit einigen Modellspektren verglichen. Ein Neutronenevaporationsspektrum lässt sich am ehesten mit einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung beschreiben. Die enthaltenen Resonanzen bei 40, 89, 179, 254, 314 und 605 keV stammen von Photoneutronenemissionen aus  $^{208}\text{Pb}$  nahe der Schwelle.

Im Abstand von 6 m zur Quelle ergibt sich bei einer Wiederholrate von 406,25 kHz und einer Bunchladung von 70 pC eine Neutronenflussdichte  $\varphi = 3,7 \cdot 10^4 \text{ n}/(\text{cm}^2\text{s})$ , was einer Quellstärke von  $1,3 \cdot 10^{11} \text{ n/s}$  entspricht. Die Form des Spektrums entspricht in guter Näherung dem  $^{235}\text{U}$ -Spaltneutronenspektrum bei einer Neutroneneinfallsenergie von 15 MeV. Ein Vergleich der *n*ELBE-Strahleigenschaften mit den Parametern weiterer Neutronenflugzeitanlagen ist Tabelle A.2.1 des Anhangs A.2 zu entnehmen.

Nur ein kleiner Teil der primären Quellneutronen passiert einen Absorber und erreicht die Experimentierhalle durch einen 2,5 m langen konischen Kollimator als wohldefinierter, divergenter Strahl. Der Kollimator besteht aus drei Sektionen mit jeweils 10,5 cm Blei und 41 cm borriertem Polyethylen. Der Durchmesser am Eingang des Kollimators beträgt 2 cm, am Ausgang 3 cm. Absorber und Kollimator wurden mit Teilchentransportrechnungen dahingehend optimiert, dass der Neutronen- und Photonenhalo des Primärstrahls minimiert, im Kollimator gestreute oder erzeugte Sekundärteilchen unterdrückt und die Intensität der



**Abbildung 3.0.4:** Spektrale Neutronenflussdichte des nELBE-Strahls (schwarz) im Vergleich zu in der Literatur am häufigsten verwendeten Modellen zur Beschreibung eines Neutronenevaporationspektrums: PLANCK- (rot) und MAXWELL-BOLTZMANN- Spektrum (blau). Das Flussdichtespektrum wurde mit der  $^{235}\text{U}$ -Spaltkammer H19 gemessen (siehe Kapitel 4.2). Im Vergleich sind zusätzlich evaluierte Daten [OECD und NEA, 2014] eines Spaltneutronenspektrums bei 15 MeV Neutroneneinflussenergie in Grün abgebildet.

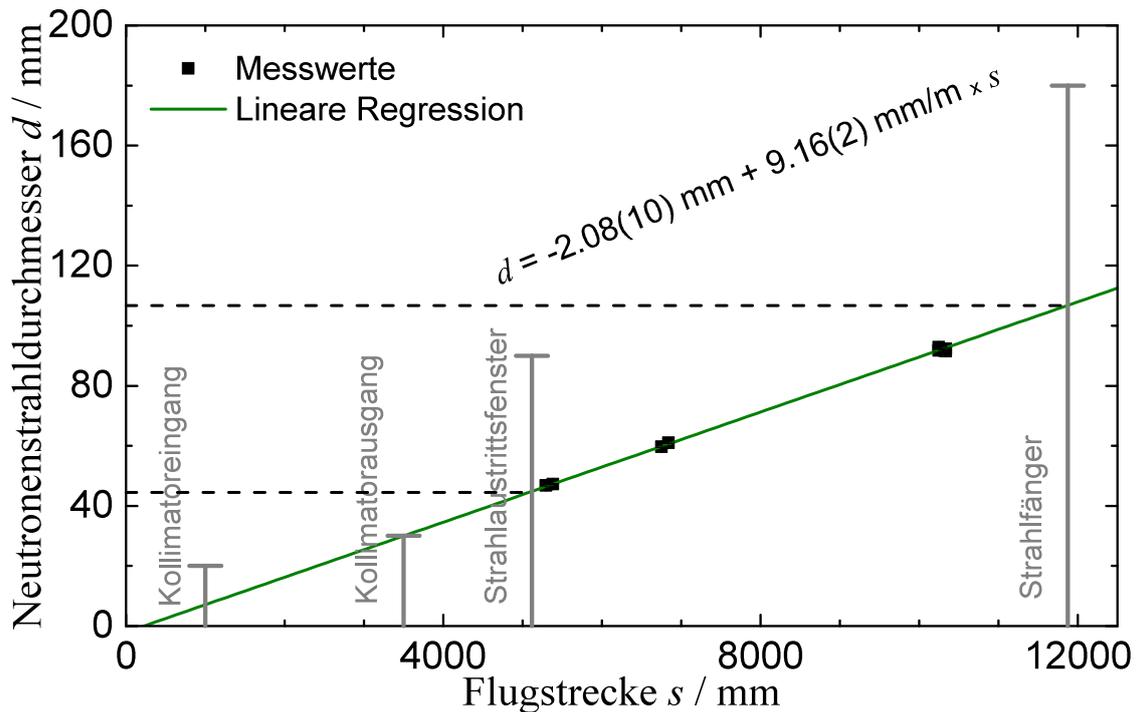
ebenfalls erzeugten Bremsstrahlung verringert werden. Weitere Details zu diesen Simulationen, sowie zum Aufbau des Kollimators können Referenz [Klug et al., 2007] entnommen werden.

In der Experimentierhalle angekommen, passiert der Neutronenstrahl ein 1,30 m langes Strahlrohr, bevor er dieses über ein 25  $\mu\text{m}$  dünnes Titanfenster verlässt. Kollimator und Strahlrohr sind evakuiert, um die Streuung der Neutronen an Luftmolekülen zu verringern. Die Halle selbst hat eine Länge von 9,3 m, ist 6 m hoch und auch 6 m breit. Ihre Größe trägt zur Reduzierung des strahlinduzierten Raumuntergrunds<sup>1</sup> entscheidend bei.

Der Neutronenstrahldurchmesser konnte für mehrere Flugstrecken experimentell bestimmt werden (siehe Abbildung 3.0.5 und [Beyer et al., 2013]). Da es sich um einen divergenten Strahl handelt, muss die Entfernung zur Neutronenquelle bei der Wahl der Targetgröße berücksichtigt werden.

Eine maßstabgetreue Detailzeichnung von nELBE kann dem Anhang in Abbildung A.4.1 entnommen werden.

<sup>1</sup>Gemeint sind hier von den Raumwänden zu den Detektoren zurückgestreute Neutronen.



**Abbildung 3.0.5:** Strahldurchmesser  $d$  des  $n$ ELBE-Neutronenstrahls in Abhängigkeit vom Abstand zur Photoneutronenquelle. Der Strahldurchmesser wurde mithilfe beweglicher Plastikzintillatoren bestimmt [Beyer et al., 2013]. Sein Öffnungswinkel ist im Wesentlichen durch den Kollimatorausgang gegeben und nimmt entlang der Neutronenflugstrecke  $s$  entsprechend zu.

In den vergangenen Jahren wurden verschiedene Detektoranordnungen entwickelt, die zur Bestimmung elastischer und inelastischer Streuquerschnitte, Winkelverteilungen und totaler Wirkungsquerschnitte genutzt werden können. Die beiden folgenden Kapitel beschreiben die Entwicklung, Konstruktion und Errichtung eines weiteren Experimentieraufbaus, der zur Untersuchung neutroneninduzierter Spaltquerschnitte von Actinoiden genutzt werden soll. Kapitel 4 konzentriert sich dabei auf die Entwicklung zweier Spaltionisationskammern, Kapitel 5 beschreibt ein Flugzeitexperiment an  $n$ ELBE mit diesen neu entwickelten Spaltkammern.

## 4 Spaltionisationskammern

*„I rigged up a pulse amplifier for the special purpose, and I also built a small ionization chamber; but the whole thing only took me about two days, and then I worked most of the night through to do the measurements because the counting rates were very low. But by three in the morning I had the evidence of the big pulses.“*

Otto Robert Frisch [[Nelson, 2014](#), S. 101]

Als Otto Frisch seine Tante Lise Meitner 1938 zu Weihnachten in Schweden besuchte, las sie gerade einen Brief ihrer Kollegen Fritz Strassmann und Otto Hahn. Die beiden Kernchemiker hatten wenige Tage zuvor in ihrem berühmten Experiment zur Herstellung transuraner Elemente in Berlin [[Hahn und Strassmann, 1939](#)] Barium nachgewiesen und schilderten dort ihre Beobachtungen. Während der Weihnachtsfeiertage diskutierten Meitner und Frisch viel über diese zunächst völlig unverständliche Entdeckung und entwickelten gemeinsam ihre Theorie der Kernspaltung. Mit dieser konnten sie die freiwerdende Energie pro Spaltung schon sehr genau vorhersagen. Otto Frisch war damit klar, dass sich Kernspaltungen in Ionisationskammern deutlich von allen bekannten Ereignissen unterscheiden mussten. Direkt nach seiner Rückkehr in Kopenhagen baute er eine kleine Uran-Ionisationskammer und erbrachte nach nur 2 Tagen den erwarteten experimentellen Nachweis [[Frisch, 1939](#)]. Eine Ionisationskammer für den Nachweis der Kernspaltung zu verwenden lag nahe, da sie damals bereits gut verstanden und ihre Anwendung weit verbreitet war. Noch heute ist sie die bevorzugte Wahl beim Nachweis von Spaltreaktionen.

Spaltionisationskammern sind gasgefüllte Detektoren, bei denen zwischen Elektrodenpaaren ein elektrisches Feld  $\vec{E}$  erzeugt wird. Jeweils eine davon ist mit einem spaltbaren Material beschichtet. Eine häufig verwendete Form ist die Parallelplatten-Spaltionisationskammer, bei denen sich Anode und Kathode als planparallele Platten in einem typischen Abstand von einigen Millimetern bis einigen Zentimetern voneinander befinden. Aber auch zylindrische oder kugelförmige Elektrodenanordnungen sind bekannt. Die wesentlichen Vorteile von Spaltionisationskammern sind ihr einfacher Aufbau, ihre gute Handhabbarkeit und ihre sehr hohe intrinsische Nachweeffizienz von nahezu 100 %. Weiterhin besitzen sie ein sehr gutes Signal-zu-Untergrund-Verhältnis, was ein begünstigender

Faktor bei der präzisen Bestimmung von Reaktionsquerschnitten ist, da die Untergrundrate oftmals die eigentliche Spaltrate um viele Größenordnungen übersteigt. Spaltkammern sind zuverlässige und robuste Messinstrumente.

Ein Nachteil der Spaltkammer ist allerdings die Abhängigkeit der in ihr induzierten Ladung vom Winkel zwischen der Bahn des ionisierenden Teilchens und dem elektrischen Feld [Knoll, 2010, S. 153]. Otto Frisch löste 1944 dieses Problem, indem er ein für Elektronen weitgehend transparentes Gitter zwischen Kathode und Anode hinzufügte [Frisch, 1944]. Wird das nach ihm benannte Frisch-Gitter auf ein Potential zwischen dem der Anode und der Kathode gelegt, wird die Drift der Elektronen-Ionen-Paare solange abgeschirmt, bis die Elektronen in den Bereich zwischen Gitter und Anode eindringen. Die dann induzierte Ladung ist unabhängig vom ursprünglichen Bahnwinkel und ermöglicht somit unter anderem auch die Bestimmung von Spaltfragmentverteilungen (z. B. die Verteilung der Kernmassen und der totalen kinetischen Energie, siehe [Al-Adili et al., 2010]).

Zur Bestimmung des neutroneninduzierten Spaltquerschnitts ist nur der Nachweis einer Spaltung innerhalb der Ionisationskammer notwendig. Von der Verwendung einer im Aufbau etwas komplexeren Frisch-Gitter-Kammer kann somit abgesehen werden.

Dieses Kapitel beschreibt den Aufbau zweier Spaltionisationskammern. Eine  $^{235}\text{U}$ -Kammer (im Folgenden UFC) soll als Neutronenflussmonitor an *n*ELBE eingesetzt werden. Die zweite (im Folgenden PuFC) wird den neutroneninduzierten Spaltquerschnitt von  $^{242}\text{Pu}$  bestimmen. Kapitel 4.1 erläutert den Aufbau beider Kammern, gibt einen Überblick über die Herstellung und die Eigenschaften der verwendeten Actinoidenproben und widmet sich einigen Optimierungen, die mithilfe von Finite-Elemente- und Teilchentransportrechnungen durchgeführt wurden. Ein kurzer Überblick über die verwendete Gasversorgung und einige Sicherheitsaspekte sind ebenfalls Teil dieses Unterkapitels. Kapitel 4.2 beschreibt im Anschluss das ebenfalls verwendete Transferinstrument H19 der PTB Braunschweig.

## 4.1 Die *n*ELBE Spaltkammern

### 4.1.1 Actinoidenschichten

Das Herzstück einer jeden Spaltionisationskammer sind die verwendeten Proben spaltbaren Materials. Sie bestimmen die hauptsächlichen Detektoreigenschaften der Kammer. Die Flächenbelegung (besser die Flächen(anzahl)dichte) des Probenmaterials spielt dabei eine wesentliche Rolle, da sie zur Spaltrate unter einem bestimmten Neutronenfluss proportional ist. Da die Reichweite typischer Spaltfragmente in fester Materie jedoch nur einige Mikrometer beträgt, hat die Dicke der Proben einen entscheidenden Einfluss auf die Nach-

weiseffizienz des Detektors. Zwei Effekte müssen dabei berücksichtigt werden:

- Der einfallende Neutronenfluss nimmt exponentiell mit der Dicke ab und
- die Selbstabsorption von Spaltfragmenten nimmt mit der Dicke des Probenmaterials zu.

Aus statistischen Gründen ist man bei der Konzeption eines Teilchendetektors bestrebt, die Signalrate zu maximieren (abgesehen von Beschränkungen durch die Kapazität der Datenaufnahme und der verwendeten Elektronik). Berücksichtigt man jedoch die beiden oben genannten Effekte, müssen die verwendeten Spaltproben sehr dünn (wenige 100 nm) und damit großflächig sein. Eine Alternative dazu ist die Anordnung vieler entsprechend kleinerer, aber immer noch sehr dünner Schichten, hintereinander. Um jedoch eine mechanische Stabilität zu gewährleisten, sind die Proben meistens auf einer Trägerstruktur aufgebracht. Das sind im Allgemeinen dünne Metallfolien, um eine elektrische Leitfähigkeit zu garantieren. Diese Folien sind dabei meistens deutlich dicker ( $\approx 10 - 500 \mu\text{m}$ ) als die Spaltproben und reduzieren den einfallenden Neutronenfluss somit ebenfalls. Damit ist der Anzahl aufeinander folgender Proben eine obere Grenze gesetzt.

Um möglichst alle Neutronen des  $n$ ELBE-Strahls für die Spaltung zu nutzen, sollten die Proben eine größere Fläche als das Strahlprofil haben (je nach Flugstrecke  $\approx 16 - 95 \text{ cm}^2$ , siehe dazu Abbildung 3.0.5 aus Kapitel 3). Zusätzlich sollten die Proben chemisch und mechanisch stabil und homogen sein, eine geringe Oberflächenrauigkeit besitzen sowie aufgrund der hohen Radioaktivität auch effizient abgeschieden werden [Vascon et al., 2011]. Im Rahmen des TRAKULA-Verbundprojektes wurden durch Dr. Klaus Eberhardt und Dr. Alessio Vascon von der Johannes Gutenberg-Universität Mainz (im Weiteren JGU) jeweils acht  $^{235}\text{U}$ - und  $^{242}\text{Pu}$ -Actinoidenproben für die Verwendung in den  $n$ ELBE-Spaltkammern hergestellt. Von den am häufigsten verwendeten Abscheidemethoden (Dampfabscheidung, Auftragung mit Pinsel, Rotationsbeschichtung) ist die Elektrodeposition (oder auch „Molecular Plating“ [Parker und Falk, 1962]) am besten geeignet, um alle oben erwähnten Anforderungen zu erfüllen.

Metallische Uranspäne von Siemens sowie hochangereichertes Plutoniumoxid<sup>1</sup> vom Oak Ridge National Laboratory (ORNL) bildeten das Ausgangsmaterial für den Abscheidungsprozess in Mainz. Der Isotopenvektor beider Materialien wurde massenspektrometrisch (durch ICP-MS) bestimmt und ist in Tabelle 4.1.1 angegeben. Es ist zu beachten, dass sich die heutige Zusammensetzung des Probenmaterials im Vergleich zum Zeitpunkt der ersten Bestimmung des Plutoniumisotopenvektors am 28.02.1980 verändert hat. Grund dafür ist

---

<sup>1</sup>Batch I.D. Pu-242-327A1

die kurze Halbwertszeit des enthaltenen Isotops mit der Massenzahl 241 ( $T_{1/2} = 14,35$  a). Durch die großen Halbwertszeiten der Uranisotope ist es seit der letzten Bestimmung des Isotopenvektors am 23.04.2013 zu keiner nennenswerten Veränderung gekommen.

**Tabelle 4.1.1:** Isotopenzusammensetzung der verwendeten Probenmaterialien. Das beim  $\beta$ -Zerfall von  $^{241}\text{Pu}$  entstandene  $^{241}\text{Am}$  wurde vor der Abscheidung chemisch abgetrennt. Die Beiträge weiterer Tochternuklide können aufgrund der langen Halbwertszeiten der anderen Pu-Isotope vernachlässigt werden.

(a) Uran		(b) Plutonium		
Isotop	Häufigkeit 23.04.2013	Häufigkeit		
		28.02.1980	10.11.2014	
$^{233}\text{U}$	0,00011(5) %	$^{238}\text{Pu}$	0,003 %	0,002 %
$^{234}\text{U}$	0,459(5) %	$^{239}\text{Pu}$	0,005 %	0,005 %
$^{235}\text{U}$	90,4(5) %	$^{240}\text{Pu}$	0,022 %	0,022 %
$^{236}\text{U}$	0,401(5) %	$^{241}\text{Pu}$	0,009 %	0,002 %
$^{238}\text{U}$	9,12(6) %	$^{242}\text{Pu}$	99,959 %	99,967 %
		$^{244}\text{Pu}$	0,002 %	0,002 %

### Der Abscheideprozess

Die sich auf dem Ausgangsmaterial gebildete Oxidschicht wurde zu Beginn des Abscheideprozesses mit konzentrierter Salzsäure entfernt. Danach wurden die Actinoiden in hochkonzentrierten Säuren unter ständigem Rühren und Wärmezufuhr aufgelöst. Das durch den Zerfall des  $^{241}\text{Pu}$  produzierte  $^{241}\text{Am}$  wurde in einem zweiten Schritt durch Anionen-Austausch-Chromatographie abgetrennt. Eine Separation des Americiums war notwendig, da dessen 400 kBq  $\alpha$ -Aktivität zur Untergrundrate beigetragen und die etwa 150 kBq  $\gamma$ -Aktivität eine zusätzliche Abschirmung der Kammer aus strahlenschutztechnischer Sicht erfordert hätte. Über  $\alpha$ - und  $\gamma$ -Spektroskopie konnte die vollständige Abtrennung des Americiums verifiziert werden.

Gelöst in 65 %-iger Salpetersäure wurden 200  $\mu\text{l}$  (Uran) beziehungsweise 100  $\mu\text{l}$  (Plutonium) der Actinoidenlösungen im Anschluss in die Depositionszelle gefüllt und dort mit einem Lösungsmittel aufgefüllt.

Die in Abbildung 4.1.1 dargestellte Depositionszelle wurde speziell für die Herstellung großflächiger Actinoidenproben am HZDR entworfen und gefertigt. Detailliertere Informationen zu ihrem Aufbau können [Vascon et al., 2011] entnommen werden.

Vor dem Beginn eines jeden Abscheidevorgangs wurden die Palladiananode und die Kathode gründlich erst mit Salzsäure, dann mit Wasser und zum Schluss mit Isopropanol

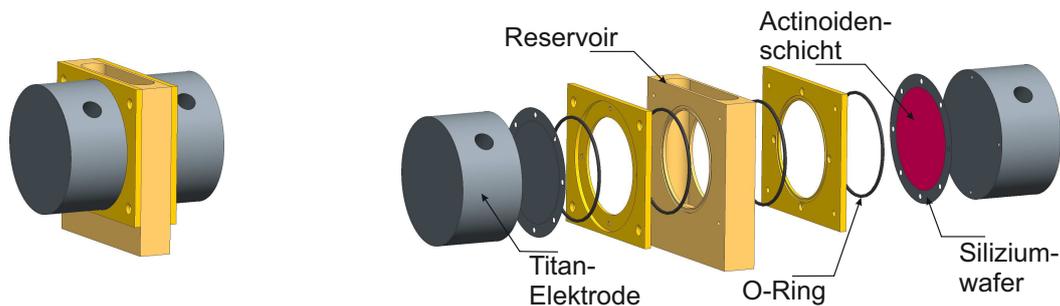


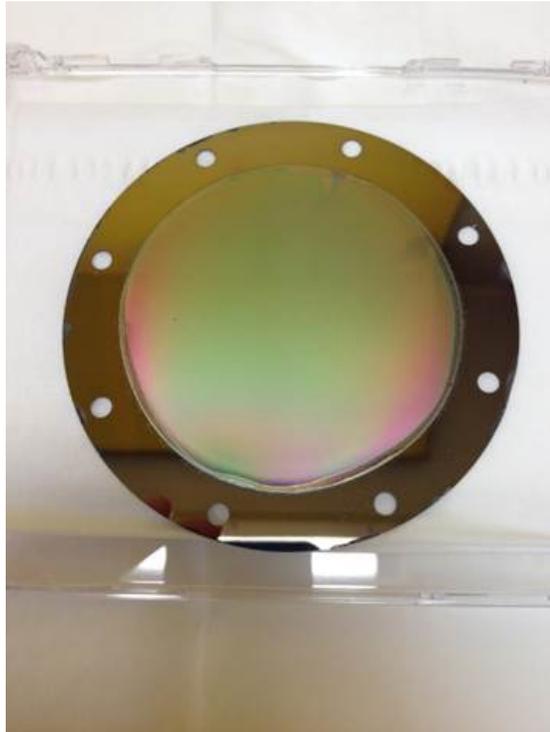
Abbildung 4.1.1: Design der Actinoiden-Depositionszelle.

gereinigt. Als Kathoden- und gleichzeitig Trägermaterial für die Actinoidenproben verwendeten die Mainzer Kernchemiker 400  $\mu\text{m}$  dicke, titanbeschichtete Siliziumwafer anstelle der üblichen Metallfolien. Die mechanisch polierten und mit Titan gesputterten Siliziumwafer zeichnen sich durch eine sehr geringe Oberflächenrauigkeit im Bereich von 10 nm (Quadratisches Mittel, im Folgenden RMS) aus. Polierte oder geätzte Metallfolien besitzen Oberflächenrauigkeiten im Bereich von 20-30 nm oder größer. In [Vascon et al., 2012] konnten sie durch unterschiedliche Analyseverfahren eindeutig zeigen, dass die geringere Oberflächenrauigkeit zu einer besseren Homogenität und Morphologie der abgeschiedenen Proben führt.

Während des dreistündigen Abscheidungsprozesses mit einer konstanten Stromdichte von  $0,6 \text{ mA/cm}^2$  wurden die Lösungen permanent durch einen Ultraschallrührkopf durchmischt. Bei der Herstellung großflächiger Proben hat diese Art der Durchmischung gegenüber dem mechanischen Verrühren Vorteile in der Schichtbildung [Vascon et al., 2011].

Nach Beendigung des Abscheidungsprozesses wurden die fertigen Deposits entnommen und getrocknet. Das dabei verdunstende Lösungsmittel verursachte Risse innerhalb der Actinoidenschicht. Durch Verwendung von *N,N*-Dimethylformamid (abgekürzt DMF) anstelle von Isopropanol oder Pyridin als Lösungsmittel konnte für Lanthanidenproben gezeigt werden, dass die Bildung solcher Risse in Verbindung mit den titanbeschichteten Siliziumwafern stark unterdrückt werden kann (vergleiche dazu Abbildung 4 in [Vascon et al., 2012]). Aufgrund des unterschiedlichen chemischen Verhaltens von Lanthaniden und Actinoiden konnte ein ähnliches Verhalten für Uran und Plutonium jedoch nicht vorausgesetzt werden. Da eine ausreichende Haftung der Actinoiden auf den Siliziumwafern nicht garantiert werden konnte, wurde auf das bewährte Isopropanol zurückgegriffen.

Abbildung 4.1.2 zeigt ein Foto einer so erzeugten Plutoniumprobe. Wie dort ersichtlich wird, ist die Schichtdicke der Plutoniumdeposits so dünn, dass es zu Interferenzerscheinungen kommt, wodurch die Schicht mehrfarbig erscheint.



**Abbildung 4.1.2:** Fotografie eines Plutoniumdeposits.

Die Abscheideeffizienz wurde durch  $\alpha$ -Spektroskopie von 10  $\mu\text{l}$ -Proben der Actinoidenlösung vor und nach dem Abscheidvorgang bestimmt. Innerhalb einer 4 %-igen Unsicherheit lag diese bei 100 %. Anhand der dort ermittelten Aktivität konnten die abgeschiedenen Massen abgeschätzt werden. Im Falle der Uranproben waren das insgesamt **158,1 mg**. Die abgeschiedene Gesamtmasse der Plutoniumdeposits konnte im Rahmen dieser Arbeit über die Spontanspaltrate des  $^{242}\text{Pu}$  zu **37,24 mg** bestimmt werden (siehe dazu Kapitel 5.4.1). Die resultierenden Flächendichten der **Uranschichten** liegen damit im Bereich von **454-462  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$** , die der **Plutoniumproben** zwischen **96 und 126  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$** .

### Radiographie der erzeugten Proben

Um die Homogenität der hergestellten Proben zu verifizieren, wurden von jedem Deposit Radiographien angefertigt (siehe Abbildung 4.1.3 (a) und 4.1.4 (a)). Dabei wird eine Probe auf eine Röntgenspeicherfolie (engl. „image plate“) gelegt, die auch empfindlich für die  $\alpha$ -Teilchen der Actinoiden ist. Im Anschluss wird die photostimulierte Lumineszenz mit einem Laserscanner ausgelesen. Das entwickelte Bild zeigt Aktivitätsverteilung und hat eine örtliche Auflösung von  $<200 \mu\text{m}$ . Zur besseren Vergleichbarkeit wurden alle aufgenommenen Radiographien auf ihre maximale Intensität normiert. Da sich Inhomogenitäten der

einzelnen Deposits in einer hintereinander liegenden Anordnung teilweise kompensieren können, wurde zusätzlich die Summe aus allen Einzelaufnahmen ausgewertet (siehe Abbildung 4.1.3(a) und 4.1.4 (a) jeweils unten rechts und Abbildung 4.1.3 (b) und 4.1.4 (b)). Anhand der gemessenen Spontanspaltraten der einzelnen Proben wurde so eine gewichtete totale Aktivitätsverteilung bestimmt. Anhand ihrer Flächendichte wurden die Actinoidenschichten in dieser mit entsprechendem Anteil berücksichtigt.

Bildet man den Quotienten aus Standardabweichung und Mittelwert der Häufigkeitsverteilung der summierten Intensitäten (zu sehen in Abbildung 4.1.5), erhält man ein quantitatives Maß für die Inhomogenität der Deposits. Für die Uran Deposits beträgt diese **2,6 %** und für die Plutonium Deposits **3,3 %**, was die exzellente Qualität der verwendeten Proben bestätigt.

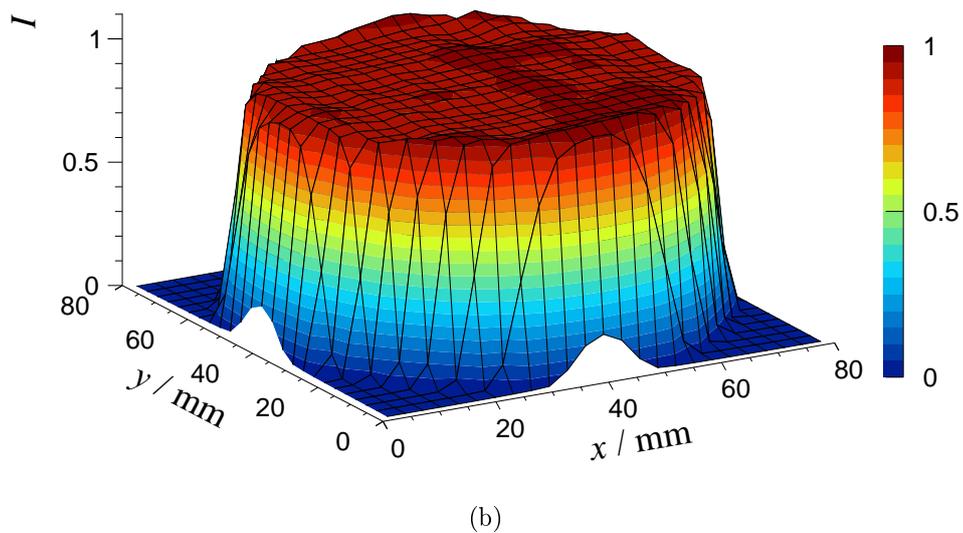
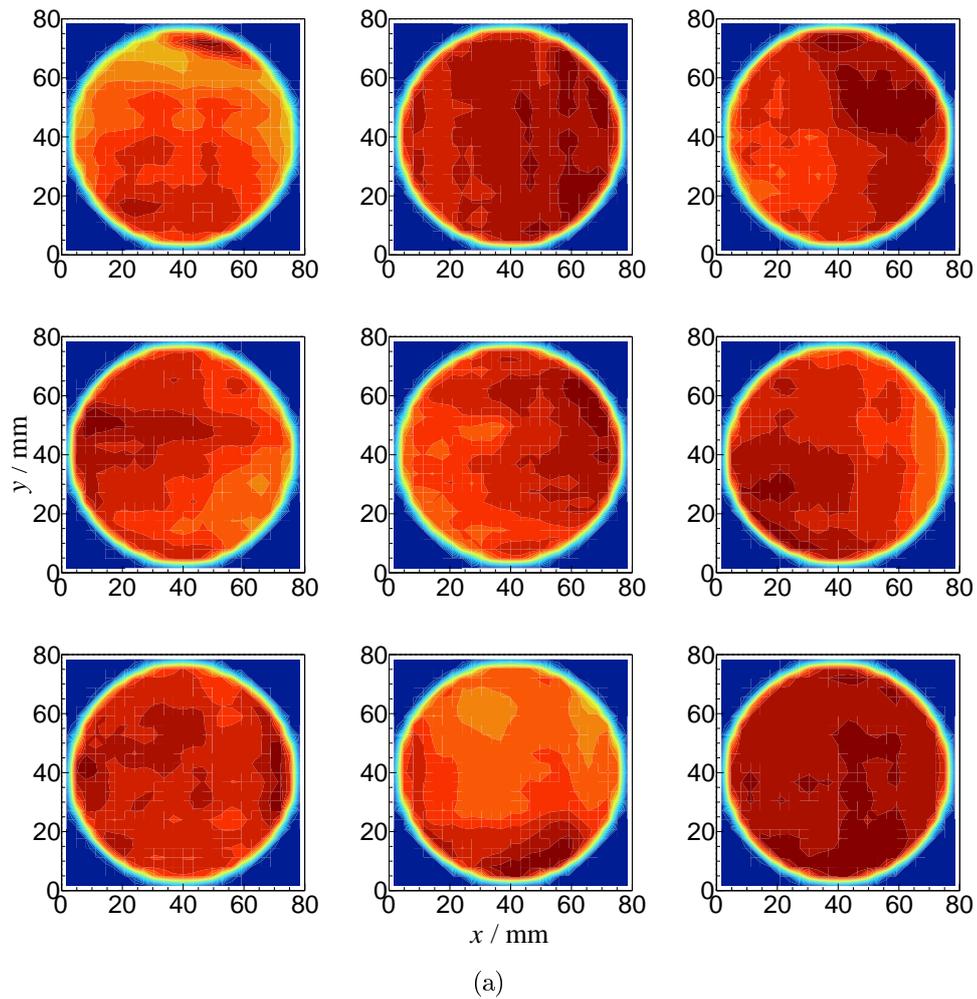
Auf weitere Eigenschaften, wie den Flächeninhalt der abgeschiedenen Schichten oder der Aktivität der einzelnen Deposits, kann leider nicht geschlossen werden, da die Empfindlichkeit der Röntgenspeicherfolie unbekannt ist und es sich bei den Aktivitätsverteilungen nur um Projektionen aus einem bestimmten Abstand handelt.

Eine weitere Bestätigung der ausgezeichneten Homogenität der Plutonium Deposits konnte mit einer energiedispersiven Röntgenspektroskopie (SEM-EDX) erbracht werden [Vascon et al., 2015]. Mit ihr konnte gezeigt werden, dass das Oberflächenprofil der Actinoidenschicht dem Profil des Siliziumwafers folgt. Das ist nur bei einer gleichmäßig abgeschiedenen Schicht der Fall.

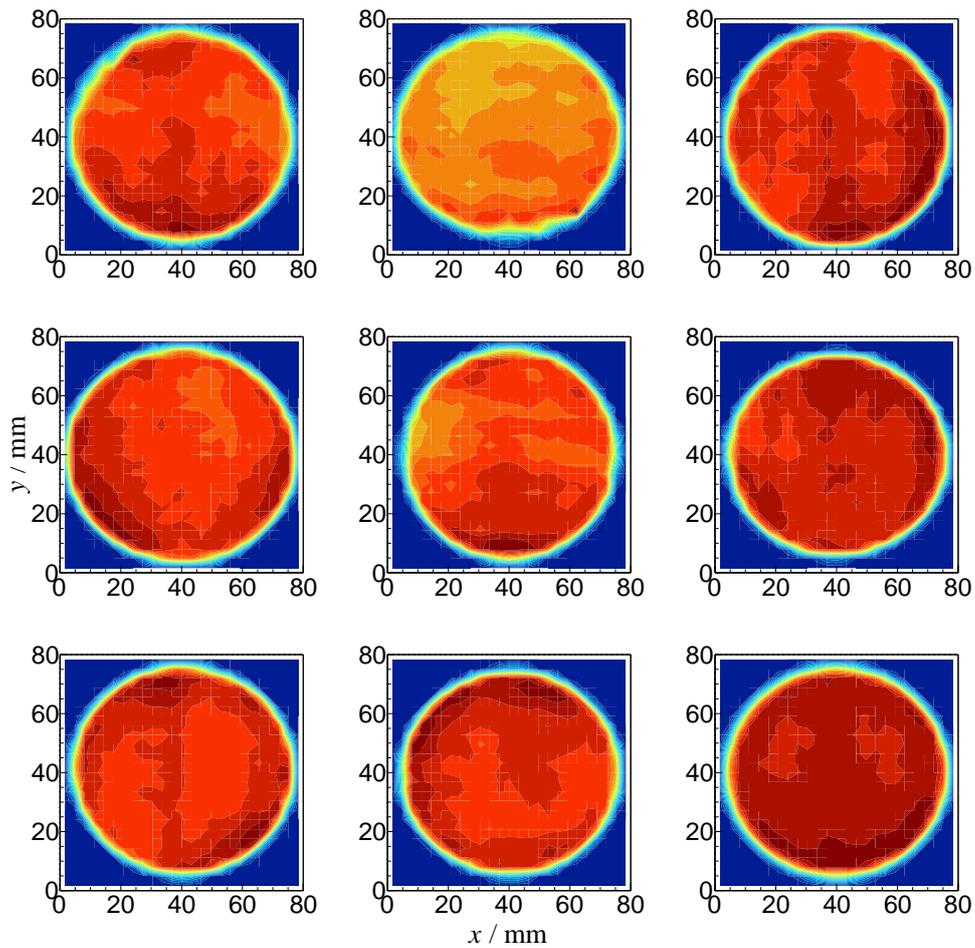
Alle wesentlichen Eigenschaften der *n*ELBE-Deposits sind in Tabelle 4.1.2 noch einmal zusammengefasst.

**Tabelle 4.1.2:** Zusammenfassung wesentlicher Eigenschaften der *n*ELBE-Deposits. Zum Vergleich sind die Attribute der  $^{235}\text{U}$ -Deposits der H19-Spaltkammer angegeben, auf die in Kapitel 4.2 noch genauer eingegangen wird.

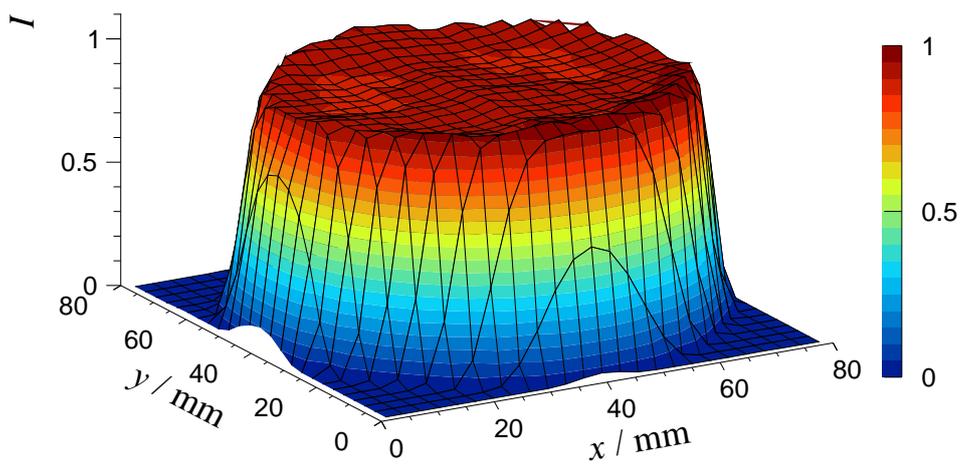
	$^{235}\text{U}$	$^{242}\text{Pu}$	H19 ( $^{235}\text{U}$ )
Art der Abscheidung:	Elektrodeposition		Gepinselt
Anzahl:	8		5 (beidseitig)
Fläche / $\text{cm}^2$ :	43,0(12)		45,4(12)
Anreicherung / %:	90,1295	99,959	99,9183
Gesamtmasse / mg:	158,01	37,24	201,4(5)
Flächendichte pro Deposit / $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ :	454-462	96-126	444,0
Gesamtaktivität / kBq:	180,11	8.317,60	32,91
Homogenität / %:	97,4	96,7	>96



**Abbildung 4.1.3:** Radiographien der Urandeposits #1, #3 - #9 (beginnend von oben links nach unten mittig) und die Summe aller (unten rechts). Die Autoradiographie erlaubt keine absolute Bestimmung der Aktivitätsverteilung. Daher wurden alle einzelnen Aufnahmen auf ihr Maximum normiert. In Abbildung (b) wurde die Summe separat im Höhenprofil dargestellt. Die Farbskala beider Abbildungen ist identisch.

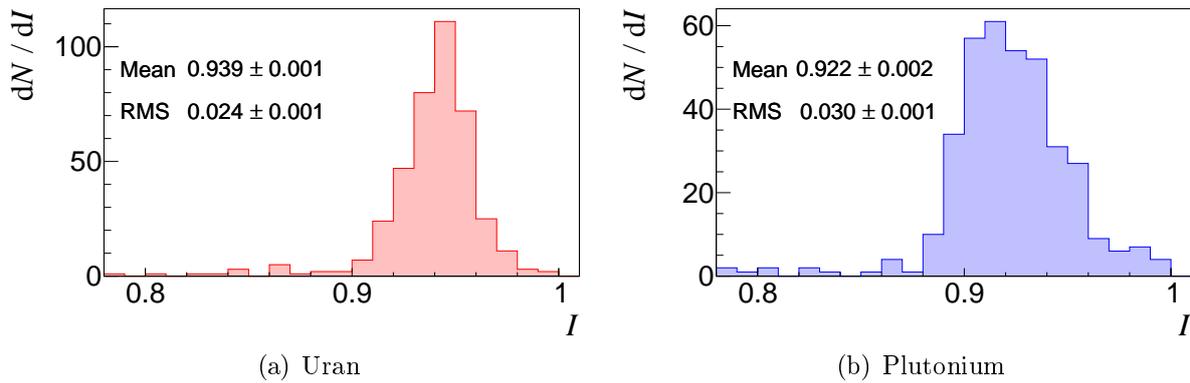


(a)



(b)

**Abbildung 4.1.4:** Radiographien der Plutoniumdeposits #1, #3 - #9 und ihre Summe. Die Anordnung der Grafiken entspricht Abbildung 4.1.3. Die Intensitäten aller Aufnahmen wurden auch hier auf ihr jeweiliges Maximum normiert. Die Farbskala für die obere und untere Abbildung ist erneut identisch.



**Abbildung 4.1.5:** Intensitätshäufigkeitsverteilung der summierten Radiographien aus Abbildung 4.1.3 (b) und 4.1.4 (b).

## 4.1.2 Aufbau

Aufgrund der hohen Aktivität der Plutoniumdeposits (siehe Tabelle 4.1.2) wurden bei der Konstruktion der Spaltkammern einige sicherheitsrelevante Aspekte berücksichtigt. Aus Strahlenschutzgründen muss ein Entweichen auch geringster Mengen Plutoniums und dessen Spaltprodukten verhindert werden. Da alle Experimente an *n*ELBE in einer Höhe von 3 m über dem Fußboden aufgebaut werden, musste das auch nach einem Sturz der Kammer aus dieser Höhe sichergestellt sein. Das Gehäuse der Kammer sollte einer solchen Belastung standhalten und dementsprechend stabil sein, gleichzeitig aber den einfallenden Neutronenstrahl nur so wenig wie möglich beeinflussen.

Da der Zusammenbau innerhalb einer Handschuhbox erfolgen sollte, musste darauf geachtet werden, dass alle notwendigen Arbeiten auch mit den Handschuhen der Box ausführbar waren. Die äußeren Abmessungen der Kammer wurden so gewählt, dass sie im fertig montierten Zustand über eine Schleuse (Durchmesser 29 cm) der Handschuhbox entnommen werden konnte.

Da es sich bei Spaltkammern um gasgefüllte Detektoren handelt, mussten Elemente zum Befüllen des Detektors mit dem Arbeitsgas P10 (90 % Argon + 10 % Methan) vorgesehen werden. Für die zwei möglichen Betriebsarten (kontinuierlicher Gasaustausch und einmaliges Befüllen) galt ebenfalls, dass keine Radioaktivität nach außen gelangen sollte. Das sich anschließende Kapitel Gasversorgung wird darauf detaillierter eingehen.

Im Inneren der Kammer mussten die Proben stabil fixiert werden. Sie sollten voneinander elektrisch isoliert und in einem definiertem Abstand parallel zu einander angeordnet werden können. Die hohe mittlere Untergrundrate infolge der großen  $\alpha$ -Aktivität der Plutoniumproben von etwa  $10^6 \text{ s}^{-1}$  macht ein separates Auslesen jeder einzelnen Schicht notwendig,

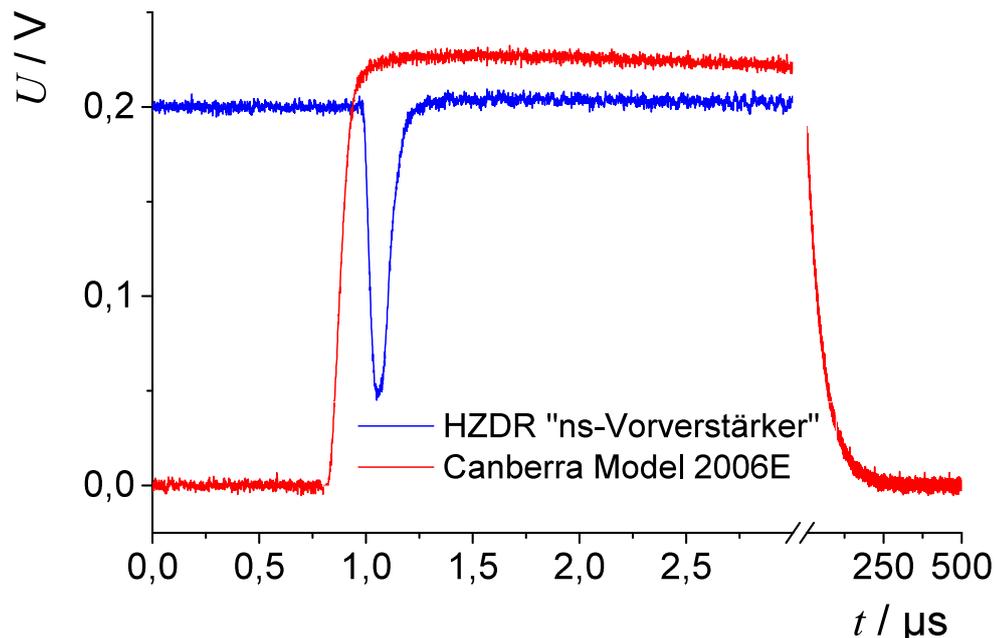
um Impulsüberlagerungen (auch Pile-up genannt) zu reduzieren. Dieses Ausleseverfahren reduziert zusätzlich das Rauschen der Vorverstärker, da die Eingangskapazität somit vermindert wird (siehe [Knoll, 2010, S. 616 f.]).

Die eigens für die Spaltkammern entwickelten ladungsempfindlichen Nanosekunden-Vorverstärker [Heidel, 2014] reduzieren die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von Pile-up zusätzlich, da ihre Entladezeit von ca. 400 ns nur etwa ein Tausendstel von herkömmlichen Vorverstärkern (z.B. Canberra 2006E  $t_{\text{fall}} \approx 400 \mu\text{s}$ ) beträgt (siehe dazu Kapitel 4.1.5). Die Ausgangssignale konventioneller Vorverstärker werden aufgrund ihrer Länge in einem spektroskopischen Verstärker integriert und in gaußförmige Impulse umgewandelt. Dadurch wird das Signal-zu-Rauschverhältnis optimiert. Die Ausgangssignale des spektroskopischen Verstärkers sind nach der Impulsformung jedoch immer noch einige Mikrosekunden lang (abhängig von der Einstellung der Verstärkers) und werden im Anschluss meist durch einen impulshöhenempfindlichen Amplituden-zu-Digital Wandler (ADC) ausgelesen. Selbst wenn sich ein Vorverstärkersignal mit der abfallenden Flanke eines vorherigen überlagert, kann der spektroskopische Verstärker beide von einander trennen, solange ihr Abstand länger als zweimal der eingestellten Integrationskonstante des Verstärkers ist. Das bedeutet, dass die Länge der abfallenden Flanke des Vorverstärkersignals nicht unmittelbar zur Vergrößerung des Pile-up beiträgt. Da die Signallängen der Nanosekunden-Vorverstärker jedoch immer noch einen Faktor 10 kürzer als die Ausgangssignale des spektroskopischen Verstärkers sind, kann auf diese Weise der Anteil des Pile-ups reduziert werden.

Ein Vergleich der Ausgangssignale beider Vorverstärker ist in Abbildung 4.1.6 für ein typisches Spaltfragment dargestellt.

Bei der Messung der Signalausbreitung auf den titanbeschichteten Siliziumwafern wurde festgestellt, dass aufgrund der geringen Dicke der Titanschicht nur eine flächige Kontaktierung der Proben möglich war. Die zu Beginn favorisierten Miniaturkrokodilklemmen wurden danach durch kupferne Kabelösen ersetzt.

Die Grundlage für das Gehäuse der Spaltkammer bildet ein massiver CF-200-Blindflansch aus Edelstahl (siehe Abbildung 4.1.7). Der Flansch ist sowohl mit Signal- als auch mit Gasdurchführungen ausgestattet. Vier Haltestäbe, auf die abwechselnd jeweils 8 Tantal-elektroden und Actinoidenschichten aufgefädelt sind, sind ebenfalls fest mit dem Flansch verbunden. Der Abstand zwischen beiden Platten wurde mit einer Geant 4-Simulation (Kurzform von **Geometry and Tracking Version 4**, [Allison et al., 2003]) optimiert und beträgt für die UFC 5 mm und für die PuFC 10 mm (siehe Kapitel 4.1.5). Distanzstücke aus Polyoxymethylen (abgekürzt POM) garantieren eine parallele Anordnung der Platten und isolieren die Anoden und Kathoden elektrisch voneinander. Die kupfernen Kabelösen stellen eine elektrische Kontaktierung zu den Elektroden her. Der Aufbau des Probenhalters ist



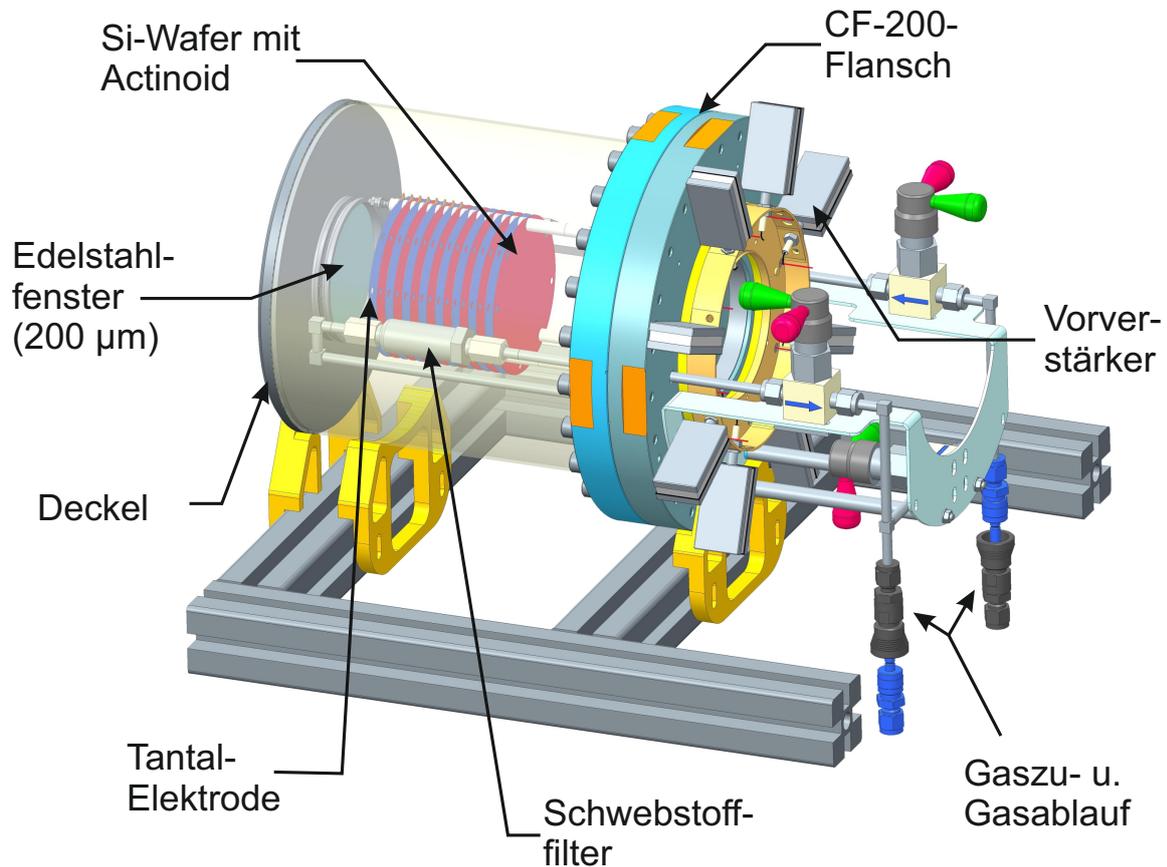
**Abbildung 4.1.6:** Vergleich einer typischen Spaltfragmentsignalform eines konventionellen Vorverstärkers (hier: Canberra Model 2006E) mit der eines am HZDR entwickelten „ns“-Vorverstärkers. Aus Gründen der besseren Darstellung wurde letztere um 200 mV verschoben.

in Abbildung 4.1.8 (a) und (b) nachzuvollziehen. Ummantelt werden die Proben von einem 3 mm starken Edelstahlrohr, an dessen anderem Ende sich ein ebenfalls 12 mm dicker Edelstahldeckel befindet. In Flansch und Deckel ist mittig ein 200  $\mu\text{m}$  dickes Edelstahlfenster mit einem Durchmesser von 85 mm eingelassen. Die Fenster sind ins Kammerinnere versetzt, welches bei einem Sturz der Kammer oder beim Hantieren mit spitzen Gegenständen in der Nähe der Fenster weiteren Schutz bietet.

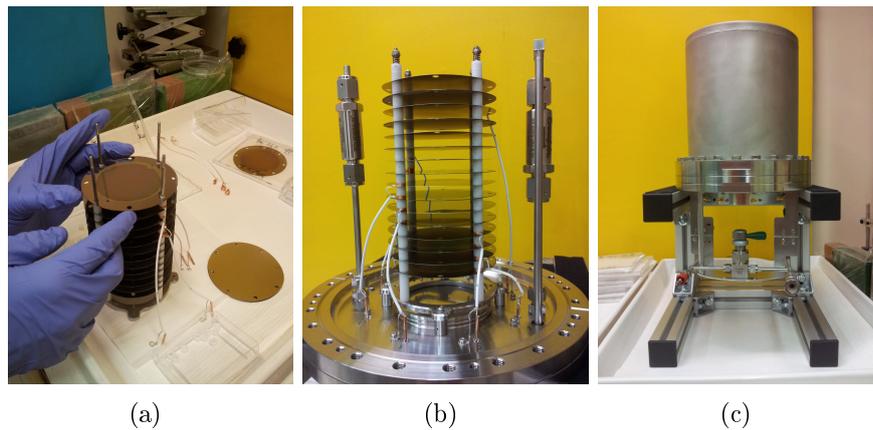
Die Gehäuse sind metallgedichtet und wurden jeweils mit einem Leybold UL-200 Helium-Lecksucher auf ihre Dichtheit überprüft. Die detektierten Leckraten betragen weniger als  $1 \cdot 10^{-10}$  mbar l/s. Dem Kammerdesign konnte Hochvakuumtauglichkeit beschieden werden.

Die acht Vorverstärker sind über SMA-Verbindungen<sup>2</sup> mit der Kammer verbunden und an deren Ende ringförmig um das Austrittsfenster angeordnet. Bei allen elektrischen Leitungen wurde darauf geachtet, dass die Kapazität möglichst gering und die Verbindungen zu den Vorverstärkern möglichst kurz sind, um das Signal-zu-Rauschverhältnis zu maximieren.

<sup>2</sup>Abk. für **Sub-Miniature-A**, Koaxialschraubverbindung, 50  $\Omega$  Impedanz, hochfrequenzgeeignet



**Abbildung 4.1.7:** Modell der *n*ELBE-Spaltkammern (hier der UFC, erkennbar an den kleinen Abständen zwischen den Elektroden). Das Gehäuse ist teilweise transparent dargestellt, um einen Blick ins Innere der Kammer zu ermöglichen. Dort sind die Siliziumwafer samt Actinoidschicht in Rot abgebildet, die Tantalelektroden in Blau. Einer der beiden Schwebstofffilter ist ebenfalls innerhalb erkennbar. Verbunden sind Filter und der Elektrodenstapel mit einem massiven CF-200-Flansch. Die Spaltkammern sind über Kunststoffhalterungen (in Gelb) elektrisch isoliert auf einem Strebenprofilgestell (Bosch) montiert. Die kleinen quaderförmigen Vorverstärker sind ringförmig um eines der Edelstahlfenster angeordnet.



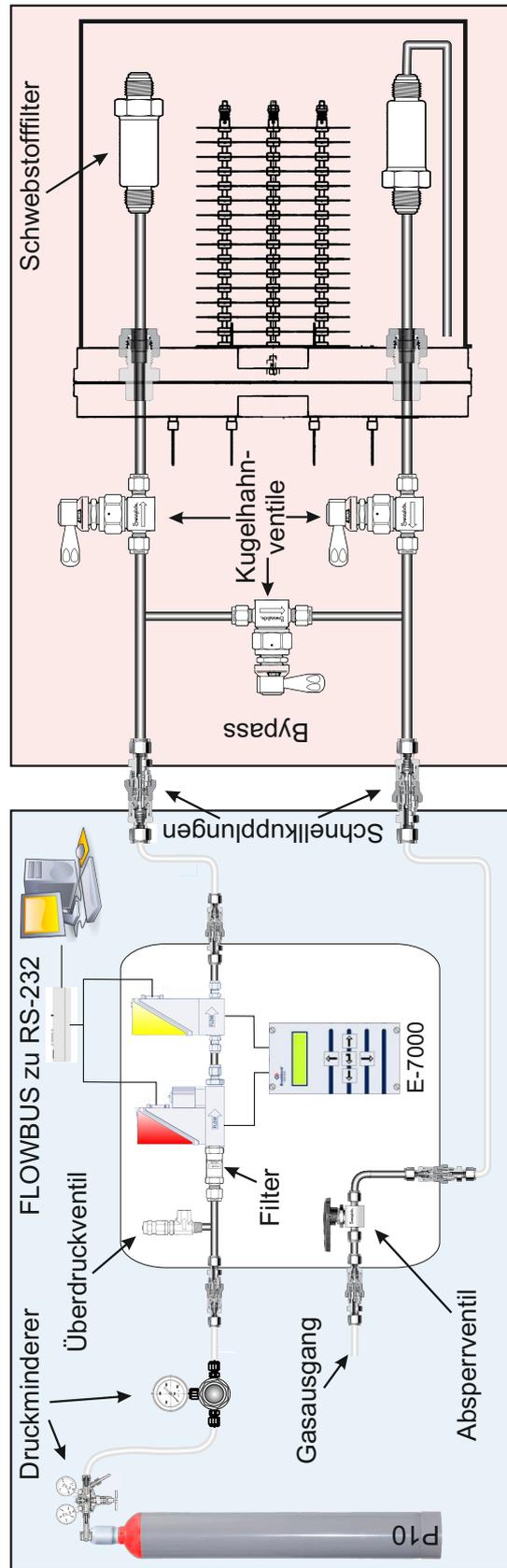
**Abbildung 4.1.8:** Fotos vom Zusammenbau der Plutonium-Spaltkammer im radiochemischen Labor der JGU Mainz. Bild (a) zeigt die Bestückung und Kontaktierung des Elektrodenstapels. Das mittlere Foto zeigt den fertigen Stapel montiert auf dem Kammerflansch. Links und rechts neben ihm sind die Schwebstofffilter zu sehen. Die weißen Kabel verbinden die Actinoidentargets mit dem Kammergehäuse und die Tantalelektroden mit kupfernen Durchführungen. Ein flächiger Kontakt zu den Scheiben wird durch die Verwendung von Kabelösen aus Kupfer erreicht. Im Bild (c) ganz rechts ist die fertig zusammengesetzte Spaltkammer abgebildet.

### 4.1.3 Gasversorgung

Neben der Güte der Actinoidenschichten ist die Qualität des verwendeten Zählgases von wesentlicher Bedeutung für das Betreiben einer Spaltionskammer. Die durch Ionisation erzeugten Elektronen werden von elektronegativen Gasen (wie zum Beispiel Sauerstoff, Wasserdampf und Kohlenstoffdioxid) gebunden. Sie stehen danach nicht mehr als freie Ladungsträger zur Verfügung. Geringere Signalamplituden und eine schlechtere Auflösung sind die Folge. Zusätzlich lässt Sauerstoff die Actinoidenproben oxidieren. Ein Eindringen solcher Gase muss deshalb verhindert werden.

Da ein dauerhafter Schutz vor dem Eindringen elektronegativer Gase sehr aufwändig ist, wird oft ein kontinuierlicher Gasaustausch bevorzugt. Bei der Verwendung von hochradioaktiven Probenmaterialien muss jedoch streng darauf geachtet werden, dass dabei kein Material entweicht. Hier besteht die Gefahr der Inhalation kleinster, radioaktiver Partikel. Die Gasversorgung der *n*ELBE-Spaltkammern musste somit hohe Sicherheitsvorkehrungen berücksichtigen und zusätzlich einfach bedien-, fernsteuer- und überwachbar sein. Der prinzipielle Aufbau der nach diesen Gesichtspunkten entwickelten Gasversorgung ist in Abbildung 4.1.9 schematisch dargestellt. Er untergliedert sich in einen gasregel- (blau eingefärbt) und einen kammerseitigen (rot eingefärbt) Teil.

Um die Detektoren vor Überdruck zu schützen und die damit verbundene potentielle Frei-



**Abbildung 4.1.9:** Prinzipieller Aufbau der Gasregelung (blau hinterlegt) und der Gasversorgung (rot hinterlegt).

*Gasregelung:* Zwei Druckminderer verringern den 200 bar Flaschendruck auf maximal 0,5 bar. Ein Überdruckventil und ein Sintermetall-Filter schützen die empfindliche Membran des Massendurchflussreglers (EL-FLOW, rote Ecke) vor zu hohem Druck und Verschmutzung. Ein Differenzdrucksensor (EL-PRESS, gelbe Ecke) überwacht den Kammerdruck. Gesteuert, ausgelesen und gespeist werden beide durch eine E-7000-Versorgungseinheit. Über den FLOW-BUS sind die Geräte mit einem PC verbunden. Durch Verschließen des Absperrventils am Gasausgang und dem Stopp der Gaszufuhr kann über den Differenzdruck auf die Dichtigkeit des gesamten Gassystems geschlossen werden.

*Gasversorgung:* Ein Bypass, bestehend aus drei Kugelhahnventilen, bietet Schutz vor Druckstößen während der Inbetriebnahme der Gasversorgung. Hocheffiziente Schwebstofffilter verhindern das Entweichen von radioaktiven Partikeln aus der Kammer.

setzung des radioaktiven Probenmaterials zu verhindern, wurden mehrere druckbegrenzende Elemente teilweise redundant vorgesehen. Der bis zu 200 bar große Gasflaschendruck wird mit einem ersten Druckminderer auf 10 bar begrenzt. Ein zweiter ist variabel einstellbar und reduziert den verbleibenden Druck auf 0,2-0,5 bar. Beide Druckminderer werden über einen Polyamidschlauch und eine absperrende Swagelok-Schnellkupplung mit dem Gasregelsystem verbunden.

Das Regelsystem besteht im Wesentlichen aus einer Kombination von Massendurchflussregler (Bronkhorst<sup>3</sup> EL-FLOW) und Drucksensor (Bronkhorst EL-PRESS). Um den empfindlichen Durchflussregler vor Verunreinigung und Überdruck zu schützen, sind ein Swagelok-Sintermetall-Filter und ein Überdruckventil vorgeschaltet. Der Drucksensor überwacht zusätzlich den anliegenden Gasdruck und schließt beim Erreichen einer definierbaren Obergrenze automatisch das Regelventil des Durchflussreglers. Beide Geräte werden über eine Bronkhorst E-7000-Versorgungseinheit mit Strom versorgt, überwacht und gesteuert. Die Versorgungseinheit lässt sich über einen speziellen Datenbus (FLOW-BUS) fernsteuern und ebenfalls überwachen. Die Verbindung des Regelkreises mit den Ionisationskammern wird ebenfalls über Polyamidschläuche mit Swagelok-Schnellkupplungen realisiert. Die beidseitig verschließenden Kupplungen sollen das Eindringen von Schmutz in die Ionisationskammer verhindern, falls die Gasregelung nicht mit der Kammer verbunden ist.

Der Massendurchflussregler ermöglicht eine Anpassung des durch die Kammer strömenden Gases auf die jeweilige Anwendung. Wurde die Kammer längere Zeit nicht benutzt, kann ein zügiger Austausch des verbliebenen Kammergases mit neuem Gas durch einen erhöhten Durchfluss (typisch: 500 ml<sub>n</sub>/min<sup>4</sup>, siehe Abbildung 4.1.10) bereits in 20 min erreicht werden. Während des Experimentierbetriebs reicht ein reduzierter Gasfluss von 20-50 ml<sub>n</sub>/min für den kontinuierlichen Gasaustausch aus. Dabei ist ein zeitlich konstanter Fluss vorteilhaft, da dieser mit dem Kammerdruck korreliert und eine Veränderung des Kammerdrucks die Drifteigenschaften der Ladungsträger im Gas beeinflusst<sup>5</sup>. Eine Vergrößerung dieses Drucks um 100 mbar bei einem Arbeitsdruck von  $p = 1$  bar,  $T = 298$  K und einer Feldstärke  $E = 300$  V/cm reduziert die Driftgeschwindigkeit der Elektronen in P10 um 10 % (vgl. [Bortner et al., 1957]).

In Abbildung 4.1.11 ist die Stabilität der Gasregelung für die *n*ELBE Uran- und Plutoniumspaltkammern über einen Zeitraum von 2 Tagen dargestellt. Die durch die Flussregelung verursachte Schwankung des Kammerdrucks in dieser Zeit betrug maximal 0,21 mbar, im

---

<sup>3</sup>Bronkhorst High-Tech B.V. | Nijverheidsstraat 1a, 7261AK Ruurlo | [www.bronkhorst.com](http://www.bronkhorst.com)

<sup>4</sup>Der Massendurchfluss wird in der Praxis in Einheiten eines Volumenstroms zu Normalbedingungen ( $\vartheta = 0$  °C und  $p = 1.013,25$  mbar) angegeben.

<sup>5</sup>Einfluss auf die Drifteigenschaften der Ladungsträger hat die Dichte des Gases, die über das ideale Gasgesetz mit dem Druck verknüpft ist.

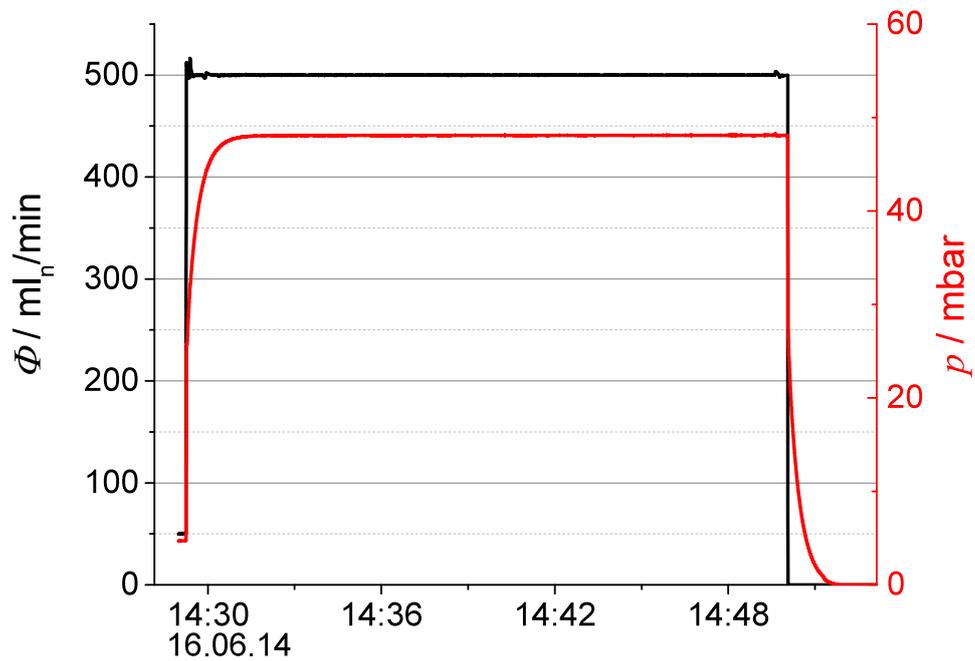


Abbildung 4.1.10: Zeitlicher Verlauf des P10-Durchflusses und Differenzdruck an der Uranspaltkammer während des Spülvorganges.

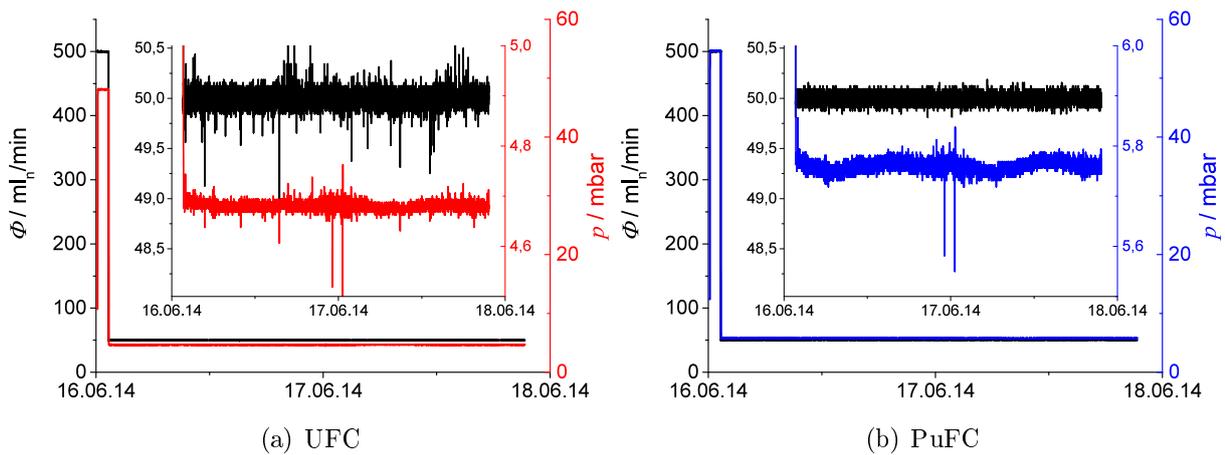


Abbildung 4.1.11: Ausschnitt aus dem gemessenen zeitlichen Durchfluss- und Differenzdruckverlauf der UFC (a) und PuFC (b) während des *n*ELBE-Experiments im Juni 2014.

Mittel deutlich weniger ( $\approx 0,011$  mbar). Eine Veränderung der Elektronendriftgeschwindigkeit infolge der Durchflussregelung kann also vernachlässigt werden.

Um die Detektoren bei Inbetriebnahme der Gasversorgung vor Druckstößen zu schützen, wurde ein Bypass direkt vor dem Eintritt in die Kammer vorgesehen. Er besteht aus einer Anordnung aus drei Kugelhahnventilen, die über Edelstahlrohre miteinander verbunden sind. Die Kugelhähne können die Gaszu- und -abfuhr verschließen und sind somit ein weiteres Sicherheitselement der Kammer. Auch sie bieten begrenzten Schutz vor dem Ein- und Austritt von Partikeln. Kammer und Bypass sind ebenfalls durch Edelstahlrohre miteinander verbunden, die bis ins Kammerinnere reichen und über Anschweißverschraubungen fest mit dem massiven Frontflansch verbunden sind. An ihrem Ende befinden sich Swagelok-Schwebstofffilter, die Schutz vor dem Austritt radioaktiver Partikel bieten. Diese speziell für die Halbleiterindustrie entwickelten ultrahochreinen Gasfilter auf Keramikbasis (Firmenbezeichnung Pall: Membralox<sup>®</sup>) filtern Partikel mit einem Durchmesser von 3 nm (z. B. Aerosole) bei einem maximalen Durchfluss von 30 l<sub>n</sub>/min mit einer Effizienz von  $(100-10^{-7})$  %. Die Filterwirkung auf größere Partikel ist noch einmal größer. Sollte der unwahrscheinliche Fall eintreten und das gesamte, sich in der Kammer befindliche Plutonium über den Gasstrom nach außen getragen werden, würde nur ein Bruchteil eines Nanogramms ( $\hat{=} 8,3$  mBq) die Filter passieren können.

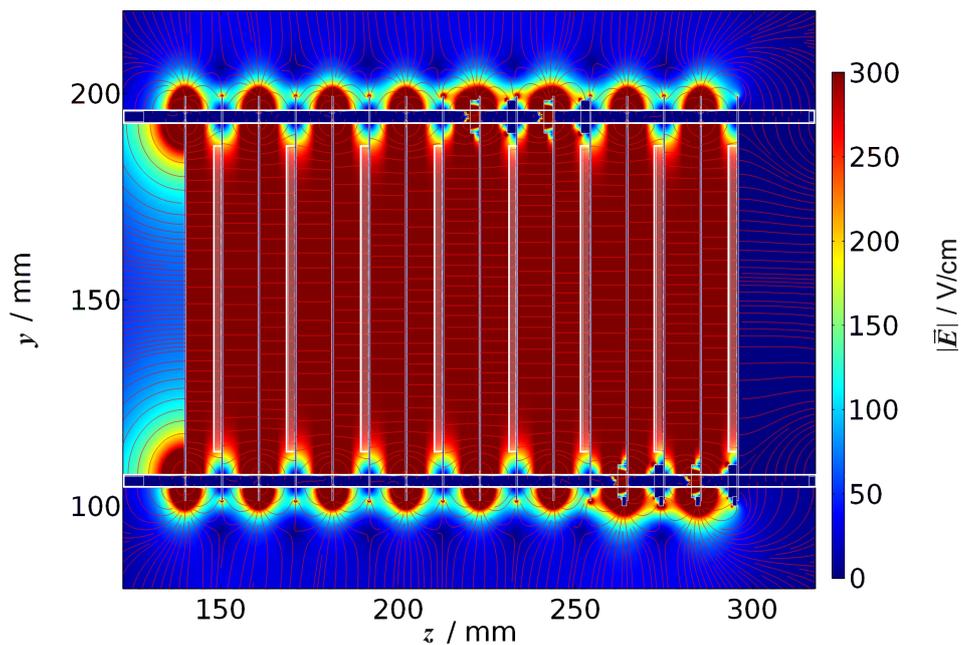
Ein zum Flansch zurückgebogenes Edelstahlrohr am Filter des Gasausgangs dient der besseren Durchmischung des Gasvolumens. Zusätzlich kann ein HEPA-Filter am Gasaustritt aufgesteckt werden, sodass die Filterwirkung noch einmal erhöht werden kann. Die in diesem Filter enthaltene Glasfasermembran kann entnommen werden. Eine strahlenschutztechnische Überwachung ist somit möglich.

Um die Dichtigkeit der Kammer zu prüfen, gibt es ein zusätzliches Absperrventil am Gasausgang der Kammer. Einmal gefüllt, kann durch Verschließen dieses Ventils am Drucksensor überprüft werden, ob innerhalb der Gasversorgung ein Leck besteht. Die Benutzung dieses Ventils ist jedoch nur mit größter Vorsicht durchzuführen, da dabei ein erhöhtes Risiko für einen zu hohen Kammerdruck besteht.

#### 4.1.4 Optimierung des elektrischen Feldes

Das elektrische Feld  $\vec{E}$  zwischen den Anoden und Kathoden des Probenhalters kann in erster Näherung als homogen angesehen werden, handelt es sich doch bei ihnen um planparallele Platten im Abstand  $D$ . Feldinhomogenitäten können von leitenden Oberflächen im Kammerinneren hervorgerufen werden und die Nachweiseffizienz sowie die Signalanstiegszeiten beeinflussen.

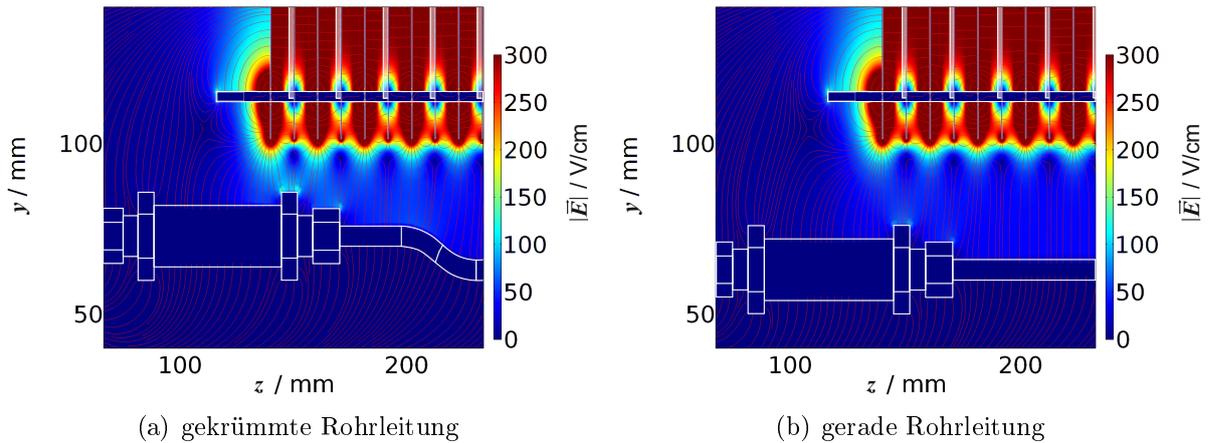
Der Einfluss der Swagelok-Schwebstofffilter und der Kupferkontaktierungen auf das elektrische Feld im Inneren der Kammer wurde mit der Finite-Elemente-Software Comsol-Multiphysics überprüft. Ein realistisches, 2-dimensionales CAD des Inneren der Ionisationskammern diente dabei als Grundlage. Nach Definition aller auf Potential (titanbeschichtete Si-Wafer,  $\varphi = 300\text{ V}$ ) und Erde (alle verbleibenden) liegender Oberflächen wurde die Poissongleichung für dieses System stationär gelöst. Die Ergebnisse dieser Berechnung sind in Abbildung 4.1.12 und 4.1.13 dargestellt.



**Abbildung 4.1.12:** Elektrischer Feldstärkeverlauf  $|\vec{E}|$  zwischen den Elektroden der Spaltkammer als Projektion aus der Schnittebene zweier Haltestifte. Die Lage der Actinoidschichten ist in Weiß angedeutet. Ihre Dicke wurde zur besseren Darstellung stark vergrößert.

Die einheitliche Farbgebung und der parallele Verlauf der roten Feldlinien in Abbildung 4.1.12 bestätigen den homogenen Feldverlauf des elektrischen Feldes zwischen den Anoden und Kathoden. In den Bereichen, in denen die Elektroden auf die Haltestifte aufgefädelt sind, kommt es zu stark lokalisierten Störungen des Feldverlaufes. Diese sind jedoch unvermeidlich, da die Scheiben von einander elektrisch isoliert in der Kammer gehalten sein müssen. Die kupfernen Kontaktierungen stören den gesamten Feldverlauf nur unwesentlich. Auch die Inhomogenitäten zwischen den Haltestäben und der am weitesten links gelegenen Anode für  $z < 145\text{ mm}$  spielen für den Nachweis der Spaltfragmente keine Rolle, da in diese Region keine Spaltfragmente emittiert werden.

Aufgrund des Einflusses der Schwebstofffilter auf den Feldverlauf der letzten beiden Kanäle (vergleiche Abbildung 4.1.13 rechts) wurden die Rohrverbindungen begradigt und damit



**Abbildung 4.1.13:** Einfluss der Swagelok-Schwabstofffilter auf die Homogenität des elektrischen Feldes im Inneren der Spaltkammer. Gezeigt sind zwei Modifikationen der Filterplatzierung als Projektion aus der Schnittebene der Filter. Die gekrümmten Rohrleitungen im Bild links führen den Filter näher an den Probenhalter heran. Das elektrische Feld in der Nähe der Filter ist dort 12 % größer als im geraden Fall.

der Abstand der Schwabstofffilter vom Rand der Elektroden von 15 auf 25 mm vergrößert. Die Feldstärke an der Oberfläche der Filter konnte damit um 12 % reduziert werden. Zusammenfassend lässt sich bemerken, dass für alle weiteren Betrachtungen ein homogener Feldverlauf zwischen den Elektroden angenommen werden kann.

#### 4.1.5 Simulationen von Impulshöhenverteilungen

Die Untersuchung des Ansprechvermögens der Spaltkammer mit Simulationsrechnungen hatte zwei Gründe. Zum einen musste die maximal deponierte Ladung innerhalb des Kammergases ermittelt werden, um die Vorverstärker an den dynamischen Bereich des zu verwendenden Ladungs-zu-Digital Wandlers (CAEN V965A, im Weiteren QDC) anzupassen. Zum anderen sollte überprüft werden, ob eine Trennung von Spaltfragmenten und  $\alpha$ -Untergrund mit der maximalen zur Verfügung stehenden Neutronenfluenz an *n*ELBE und den abgeschiedenen Probenmassen möglich ist und gegebenenfalls optimiert werden kann.

Im Hinblick auf das in Kapitel 5.4.2 diskutierte Experiment wird das Augenmerk dieses Unterkapitels auf der Beschreibung der PuFC liegen.

Aufgrund der hohen Aktivität der Plutoniumproben besteht die Möglichkeit, dass 2, 3 oder sogar 4  $\alpha$ -Teilchen innerhalb der typischen Signaldauer von 300-500 ns gleichzeitig im Kammergas detektiert werden. Wie zu Beginn des Kapitels bereits beschrieben, ist das Ionisationsvermögen eines  $\alpha$ -Partikels im Vergleich zu dem eines Spaltfragmentes so gering,

dass beide anhand ihrer in der Kammer induzierten Ladung gut zu unterscheiden sind. Die Ladungssignatur von mehreren gleichzeitig (innerhalb der Signaldauer, hier 400 ns) nachgewiesenen  $\alpha$ -Teilchen kann jedoch der Signatur eines Spaltfragments entsprechen. Die Wahrscheinlichkeit  $P_n$ , dass innerhalb eines solchen Zeitintervalls  $\tau$  neben einem primären Ereignis ( $\alpha$ -Teilchen oder Spaltfragment) noch  $n$  weitere Teilchen nachgewiesen werden, ergibt sich aus [Poisson, 1841, Tenney, 1984]:

$$P_n(Z, \tau) = \frac{(Z\tau)^n e^{-Z\tau}}{n!}, \quad (4.1.1)$$

wobei  $Z$  die mittlere, zufällige Teilchenrate beschreibt.

Aus der auf acht Schichten verteilten Gesamtaktivität der Plutoniumproben lässt sich mit einer Nachweiseffizienz von etwa 50 % für  $\alpha$ -Teilchen<sup>6</sup> eine mittlere Ereignisrate von 521.000 Ereignissen pro Sekunde und Kanal abschätzen. Mit Gleichung (4.1.1) kann damit die Wahrscheinlichkeit für den Nachweis von Pile-up angegeben werden:  $P_{n>0} = 1 - P_{n=0} = 18,82\%$ . Die Wahrscheinlichkeit dafür, dass drei Ereignisse gleichzeitig nachgewiesen werden, beträgt 1,76 %. Impulsüberlagerungen noch höherer Ordnung ( $n > 2$ ) treten nur in unter einem Promill der Fälle auf. Für die UFC beträgt die Wahrscheinlichkeit, Pile-up zu detektieren unter 1 %. Höhere Ordnungen ( $n > 1$ ) können für diese Spaltkammer komplett vernachlässigt werden.

Um das Impulshöhenspektrum der Spaltkammern zu simulieren, wurde Geant 4 in der Version 10.1 verwendet. Geant 4 ist vielseitig einsetzbar, individuell konfigurierbar und gewinnt deshalb auch immer mehr Bedeutung im Bereich der Teilchentransportsimulationen. Historisch gesehen ist es jedoch nicht die bevorzugte Wahl für Simulationen des Energieverlustes schwerer Ionen in Materie. In Version 9.3 (Dezember 2009) wurde jedoch das derzeit für diesen Prozess und die hier auftretenden Energien maßgebliche Modell [ICRU, 2005] implementiert. Die simulierten Reichweiten massiver, geladener Teilchen sind nun in Übereinstimmung mit vielen experimentell bestimmten Werten [Lechner et al., 2010]. Hervorgehoben werden muss, dass alle folgenden Simulationsrechnungen mit der derzeit akkuratesten Physik-Referenzliste von Geant 4 (QGSP\_BIC\_EMZ<sup>7</sup>) durchgeführt wurden. Das Geometriemodell der Simulation wurde weitestgehend an den tatsächlichen Aufbau der Spaltkammer (vergleiche dazu Kapitel 4.1.2) angelehnt. Zur Vereinfachung wurde jedoch nur ein Elektrodenpaar verwendet. Auch auf die Schwebstofffilter im Inneren der Kammer und auf die Gasversorgung außerhalb wurde verzichtet, da sie, wie im vorherigen

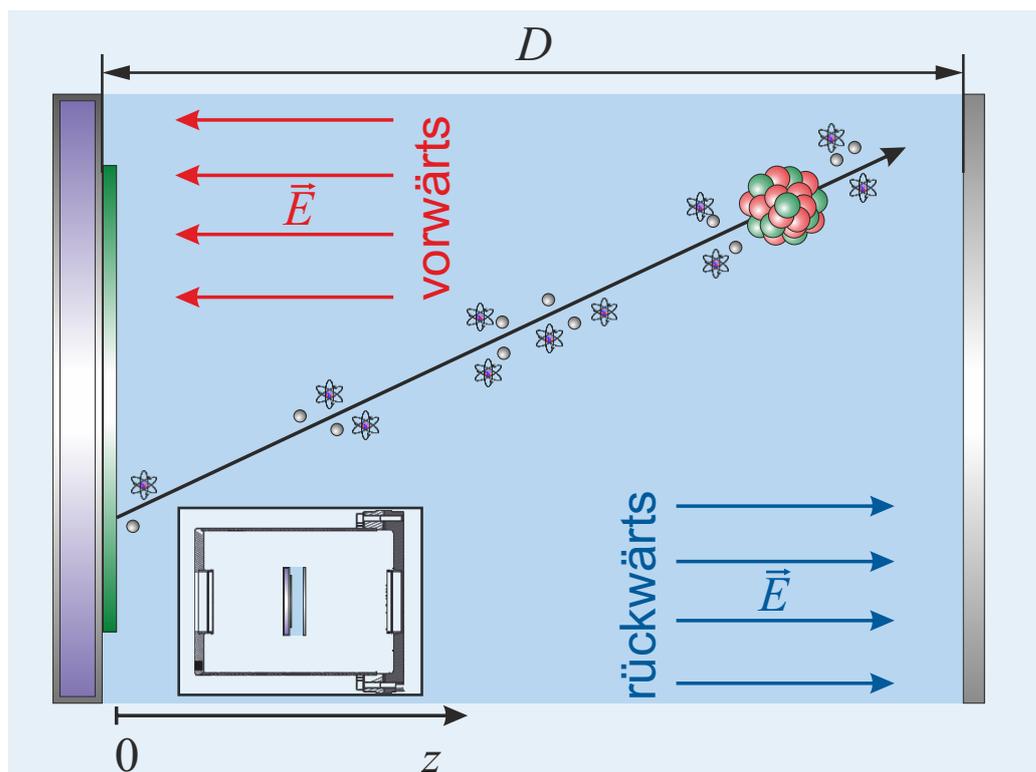
<sup>6</sup>Bei einer fast 100 %igen Nachweiswahrscheinlichkeit im Kammergas und einer Emission in  $4\pi$  verlässt nur etwa die Hälfte der  $\alpha$ -Teilchen die Actinoidenschicht. Der Rest wird im Siliziumwafer gestoppt und trägt nicht mit bei.

<sup>7</sup>siehe [Physics Lists EM constructors in Geant 4 Version 10.1](#)

Kapitel 4.1.4 zeigt, auf das elektrische Feld und damit auch auf die Signalerzeugung keinen Einfluss haben. Obwohl das gesamte Innere der Ionisationskammer mit P10 gefüllt war, wurden nur Ereignisse berücksichtigt, die in der Region zwischen Deposit und Tantalelektrode nachgewiesen wurden („Sensitives Volumen“). Auf die Betrachtung von Randeffekten konnte auf Grundlage dieser Geometrie verzichtet werden [Knoll, 2010, S. 150]. Eine Prinzipskizze dieses Aufbaus ist in Abbildung 4.1.14 zu sehen. Dargestellt ist dort das gasgefüllte Volumen zwischen dem titanbeschichteten Siliziumwafer (Lila) samt Probenmaterial (grün) und einer Tantalelektrode (grau). Nach erfolgter Kernspaltung verlässt ein Spaltfragment die Actinoidenschicht und ionisiert das Zählgas (blau). Je nach Richtung des angelegten elektrischen Feldes zwischen beiden Elektroden driften die Elektronen in Richtung der Tantalelektrode („vorwärts gerichtet“ oder engl. „forward biased“, im Weiteren FB) oder zur Actinoidenprobe („rückwärts gerichtet“ oder engl. „reversed biased“, im Weiteren RB). Die ebenfalls erzeugten Ionen bewegen sich in die jeweils entgegengesetzte Richtung.

Die Schichtdicke der Actinoidenprobe wurde aus der abgeschiedenen Gesamtmasse unter Annahme einer definierten Stöchiometrie und Massendichte ( $\text{U}_3\text{O}_8$ :  $\rho = 8,38 \text{ g/cm}^3$  und  $\text{PuO}_2$ :  $\rho = 11,46 \text{ g/cm}^3$ ) ermittelt. Innerhalb des Schichtvolumens wurden Spaltfragmente und Untergrundereignisse räumlich gleichverteilt generiert und in alle Raumwinkelelemente gleichwahrscheinlich emittiert. Geant 4 erzeugte dabei Untergrundereignisse unter Nutzung der „RadioactiveDecay“-Physikerweiterung. Entsprechend der Zusammensetzung des jeweiligen Targetmaterials wurden dabei die enthaltenen Isotope mit thermischen Energien (25 meV) im Probenvolumen erzeugt. Geant 4 übernahm deren Zerfall selbstständig unter Berücksichtigung der korrekten Verzweungsverhältnisse und Emissionsenergien. Spaltfragmente wurden immer paarweise erzeugt und in entgegengesetzte Richtungen emittiert. Ihre kinetischen Energien, ihre Kernladungen und Massen wurden mit dem GEF-Code [Schmidt et al., 2014] ereignisweise erzeugt. Die entsprechenden Verteilungen sind für  $^{242}\text{Pu}$  in Abbildung A.3.3 und A.3.2 dargestellt. Genauere Informationen zu GEF und den simulierten Verteilungen können dem Kapitel A.3 des Anhangs entnommen werden.

Zu Beginn eines jeden Ereignisses wurde zufällig festgelegt, ob es sich um ein Untergrund- oder um ein Spaltereignis handeln sollte. Beide Typen wurden dabei gleichhäufig erzeugt. Im Anschluss daran wurde die Anzahl der zusätzlich emittierten Untergrundereignisse bestimmt. Maximal konnten bei dieser Simulation 6 weitere  $\alpha$ -Teilchen neben dem primären Ereignis im Kammergas nachgewiesen werden. Entsprechend der Anzahl der davon auch



**Abbildung 4.1.14:** Nicht maßstäbliche Illustration des Geometriemodells der Geant 4-Simulation zur Ladungsbestimmung. Abgebildet ist ein Spaltfragment, welches die grüne Actinoidenschicht verlässt und das Kammergas (in Hellblau) ionisiert. Der titanbeschichtete Siliziumwafer (links) ist in Lila mit grauem Rand dargestellt. Gegenüberliegend befindet sich im Abstand  $D$  eine Tantalelektrode. Zwischen beiden befindet sich der für die Signal-erzeugung sensitive Bereich (dunkleres Blau). Abhängig von der Richtung des angelegten elektrischen Feldes  $\vec{E}$  bewegen sich die erzeugten Elektronen von der Actinoidenprobe weg (vorwärts gerichtete Feldkonfiguration) oder auf sie zu (rückwärts gerichtete Feldkonfiguration). Die ebenfalls erzeugten positiv geladenen Ionen bewegen sich mit deutlich geringerer Driftgeschwindigkeit in die jeweils entgegengesetzte Richtung. Das kleine Bild am linken unteren Bildrand gibt einen Überblick über die Position dieser Anordnung innerhalb des Spaltkammergehäuses.

nachgewiesen Teilchen wurde jedes dieser Detektorereignisse über:

$$w = P_n(Z_\alpha, \tau) \cdot \begin{cases} \frac{Z_{\text{FF}}}{Z_\alpha} & \text{falls Spalt ereignis} \\ 1 & \text{falls Untergru nd ereignis} \end{cases} \quad (4.1.2)$$

entsprechend gewichtet. Berücksichtigt wurde im Vergleich zu Gleichung (4.1.1) zusätzlich nur noch das Verhältnis von erwarteter Spaltrate ( $Z_{\text{FF}} \approx 6 + 30$  neutroneninduzierte und spontane Spaltungen pro Sekunde) zur Untergrundrate ( $Z_\alpha \approx 8,3 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ ) der gesamten Kammer.

### Energie- und Ladungsverteilungen

Um die Verteilung der im Zählgas deponierten Energie der Spalt- und Untergrundereignisse zu erhalten, musste die Energiedeposition entlang aller simulierten Teilchentrajektorien summiert werden. Für vier unterschiedliche Abstände  $D$  zwischen Actinoidenprobe und Tantalelektrode ist das Ergebnis dieser Betrachtung in Abbildung 4.1.15 (a) zu sehen.

Die Verteilung der Energiedepositionen der Spaltfragmente erstreckt sich für kürzere Plattenabstände hin zu kleineren Ladungen, was bedeutet, dass viele Fragmente erst in der gegenüberliegenden Elektrode gestoppt werden und somit nicht ihre gesamte kinetische Energie an das Gas abgeben können. Die dabei induzierte Ladung wird durch die Vergrößerung des Elektrodenabstands jedoch stärker erhöht als die induzierte Ladung der Signale von  $\alpha$ -Teilchen. Das ist eine ganz wesentliche Erkenntnis, die es erlaubt, die Trennbarkeit von Spaltfragmenten und  $\alpha$ -Teilchen über die Vergrößerung des Plattenabstandes zu erhöhen!

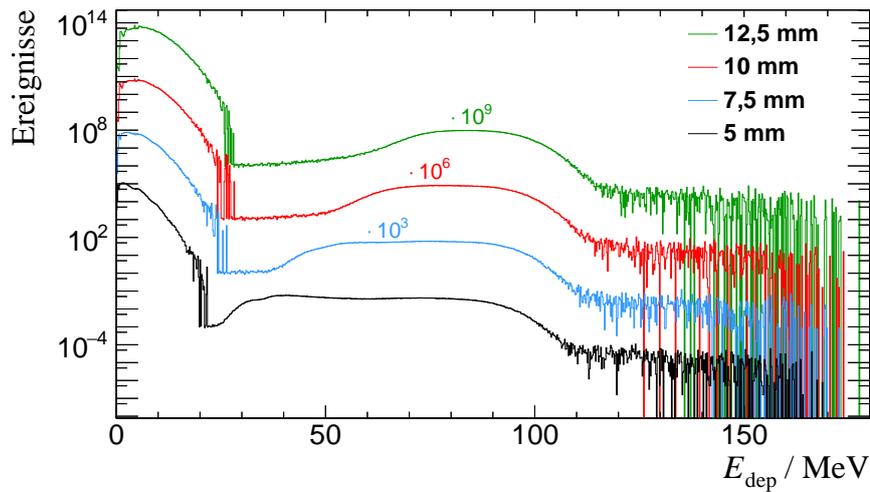
Vergleicht man die hier auftretenden höchsten Energien mit der maximalen kinetischen Energie der Spaltfragmente in Abbildung A.3.2 (a), so stellt man fest, dass alle Ereignisse oberhalb von 110 MeV einer Impulsüberlagerung von einem Spaltfragment mit einem oder mehreren  $\alpha$ -Teilchen entstammen müssen. Alle Ereignisse oberhalb von 125 MeV können aber nur dem gleichzeitigen Nachweis zweier Spaltfragmente entsprechen. Diese Ereignisse sind zwar fast 4 Größenordnungen unterdrückt, sollten aber auch im gemessenen Ladungsspektrum zu finden sein. Zwei Spaltfragmente werden immer dann nachgewiesen, falls die Spaltung in der Nähe des Randes der Actinoidenschicht erfolgt oder eines der Spaltfragmente nach Streuung am Silizium, Titan oder Plutonium ebenfalls in das sensitive Volumen eindringt.

In Abbildung 4.1.16 (a) ist das Depositionsspektrum in seine einzelnen Beiträge zerlegt. Dort erkennt man den Verlauf der Spaltfragmentverteilung (blau gefüllt) unterhalb der Untergrundereignisse (in Rot). Der Einsatz in dieser Grafik zeigt, wie die Überlagerung unterschiedlich vieler  $\alpha$ -Teilchen das resultierende Untergrundspektrum formt.

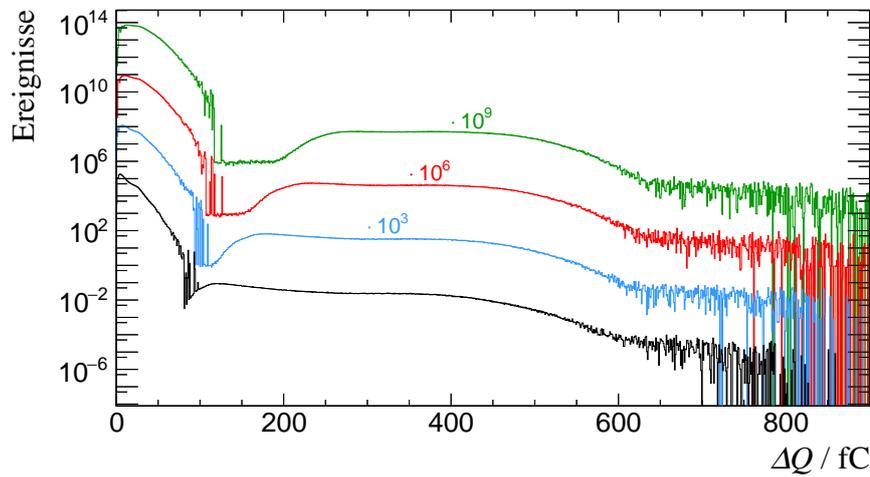
Da nicht die deponierte Energie, sondern die induzierte (Gesamt-)Ladung in einer Ionisationskammer die direkte Messgröße ist, müssen die simulierten Energien noch in eine messbare Ladung umgerechnet werden. Für den einfachen Aufbau einer Ionisationskammer kann dieser Zusammenhang über den Energieerhaltungssatz hergeleitet werden. Die vollständige Herleitung findet sich zum Beispiel in [Knoll, 2010, S. 151 ff.] und sei im Folgenden nur in ihren Grundzügen wiedergegeben.

Für jeden Simulationsschritt<sup>8</sup>  $i$  kann die Anzahl  $n_i$  der am Ort  $z_i$  durch Ionisation erzeugten

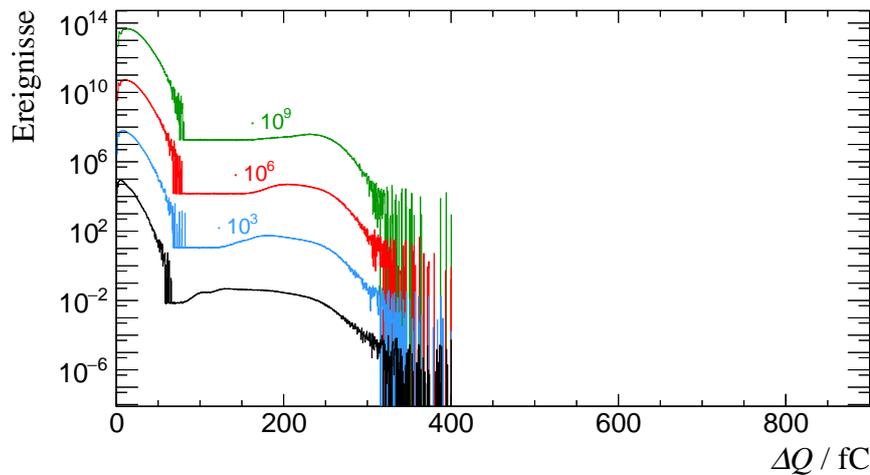
<sup>8</sup>Geant 4 unterteilt jede Teilchentrajektorie („G4Track“) in einzelne Schritte („G4Step“). Dabei entspricht jeder Schritt nicht zwangsläufig einer Interaktion mit dem Medium.



(a) Energiedeposition

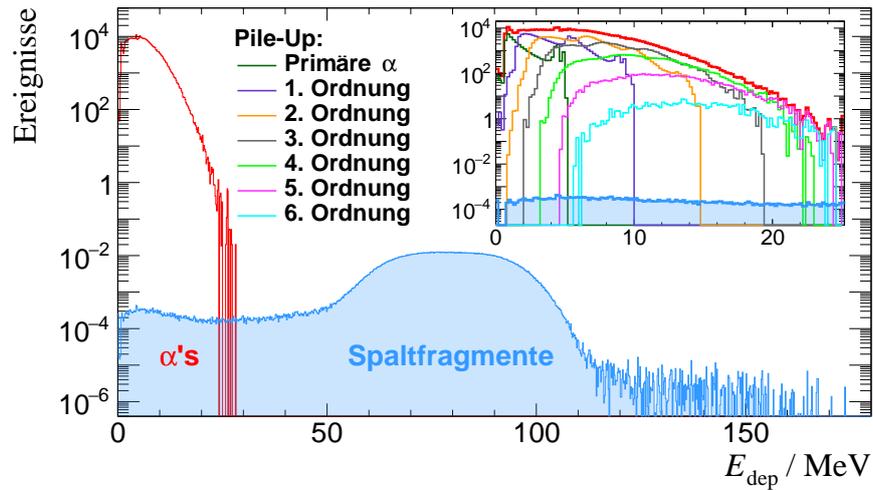


(b) induzierte Ladung (vorwärts)

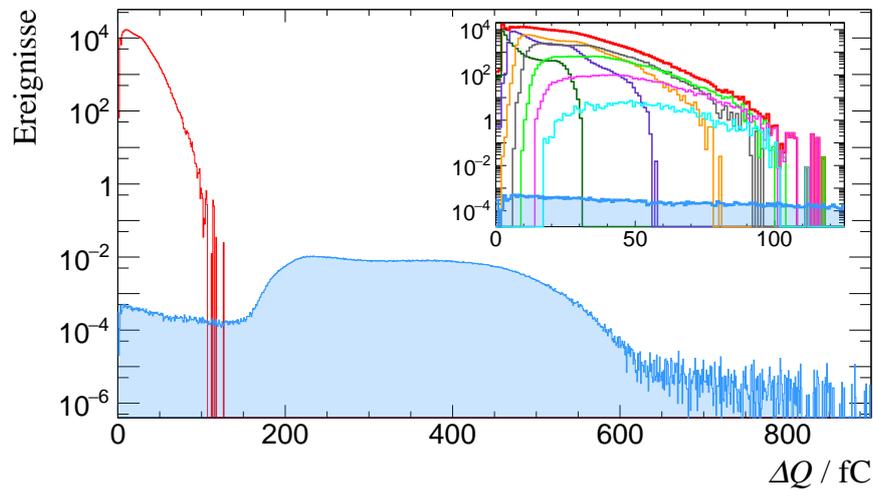


(c) induzierte Ladung (rückwärts)

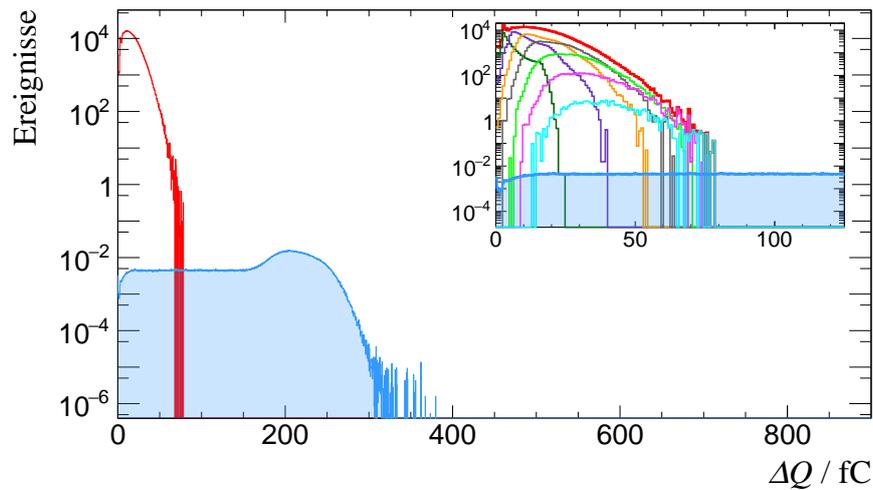
**Abbildung 4.1.15:** Simulierte Energiedeposition  $E_{\text{dep}}$  und induzierte Ladung  $\Delta Q$  in Abhängigkeit des Elektrodenabstandes  $D$  für die vorwärts und rückwärts gerichtete Feldanordnung. Zur besseren Unterscheidung wurden die mit Gleichung (4.1.2) gewichteten Histogramme skaliert.



(a) Energiedeposition



(b) induzierte Ladung (vorwärts)



(c) induzierte Ladung (rückwärts)

**Abbildung 4.1.16:** Simulierte Energiedeposition  $E_{\text{dep}}$  und induzierte Ladung  $\Delta Q$  für  $D = 10$  mm. Die Beiträge der Spaltfragmente (in Blau) und des  $\alpha$ -Untergrunds (in Rot) sind mit Gleichung (4.1.2) gewichtet und eigenständig dargestellt. Der Einsatz zeigt den Bereich des Untergrunds vergrößert und nach den Beiträgen unterschiedlicher Ordnungen von  $\alpha$ -Pile-up aufgeschlüsselt.

Ladungsträgerpaare über:

$$n_i = \frac{E_i}{W} \quad (4.1.3)$$

ermittelt werden. Dabei ist  $E_i$  die dort deponierte Energie des ionisierenden Teilchens und  $W = 25,5 \text{ eV}$  die Energie zur Erzeugung eines Elektronen-Ionenpaares [Particle Data Group, 2008]. Um Rekombinationen zu verhindern, muss ein ausreichend starkes elektrisches Feld anliegen. Ist die Integrationszeit der verwendeten Elektronik groß gegen die Ladungssammelzeiten, kann die Energie zur Beschleunigung der Ladungsträger nur aus der gespeicherten Feldenergie ( $\frac{1}{2}C\varphi^2$ ) kommen. Die Reduzierung dieser bewirkt einen Abfall des Potentials um  $\Delta\varphi$ , welches bei konstanter Kapazität  $C$  der Kammer nach  $\Delta\varphi = \frac{\Delta Q}{C}$  eine Änderung der gespeicherten Ladung um  $\Delta Q$  zur Folge hat. Diese Änderung kann von einem ladungsempfindlichen Vorverstärker nachgewiesen werden. Es ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$\Delta Q = \frac{e}{DW} \sum_i E_i \begin{cases} (D - z_i) & \text{FB} \\ z_i & \text{RB} \end{cases} \quad (4.1.4)$$

Summiert wird dabei wieder über jeden Simulationsschritt  $i$  der Teilchentrajektorie. Um die Gesamtladung des Detektorereignisses zu erhalten, muss im Anschluss nur noch über alle detektierten Teilchen summiert werden. Die Ergebnisse davon sind in Abbildung 4.1.15 (b) und (c) zu sehen.

Vergleicht man die vorwärts und rückwärts gerichteten Feldkonfigurationen, so scheint die Trennung zwischen Untergrund- und Spaltereignissen bei letzterer besser. Jedoch wird das folgende Unterkapitel zeigen, dass der Anteil an Spaltfragmenten mit Ladungen vergleichbar denen der Untergründereignisse deutlich größer ist. Die Nachweiseffizienz für Spaltfragmente wird dadurch stark vermindert. Für FB ist diese deutlich höher. Eine gute Trennung ist dort aber erst ab einem Plattenabstand von  $D > 7,5 \text{ mm}$  gegeben.

Für beide Feldanordnungen legt der augenscheinlich konstante „Plateau“-Bereich zwischen dem Maximum der Spaltfragmente und dem hochenergetischen Ende des Untergrundes die Vermutung nahe, dass das Spektrum zur Ladung 0 konstant extrapoliert werden kann [Gayther, 1990, Nolte und Thomas, 2011, Plompen et al., 2011]. Bereits in [Pausch et al., 1987] konnte jedoch mit einem einfachen Modell belegt werden, dass eine konstante Erweiterung das wirkliche FB-Ladungsspektrum unter- und das RB-Spektrum überschätzt. Dieser Sachverhalt konnte in dieser Arbeit bestätigt werden und ist in Abbildung 4.1.16 (b) dargestellt.

### Intrinsische Nachweiseffizienz

Die intrinsische Nachweiseffizienz einer Spaltionsisationskammer ist definiert als das Verhältnis aus der Anzahl der detektierten zur Anzahl der tatsächlich stattgefundenen Spaltungen. Zum Nachweis einer Spaltung ist es notwendig, dass mindestens eines der beiden Spaltfragmente die Actinoidenschicht verlässt. Dabei sollte es jedoch noch so viel kinetische Energie besitzen, dass es das Zählgas in ausreichendem Maße ionisieren kann. Die Höhe dieser Mindestenergie hängt maßgeblich von der Sensitivität der verwendeten Messelektronik ab. Oft muss die Nachweisschwelle aber erhöht werden, um Zählratenverluste der Datenaufnahme (Totzeit) infolge der hohen Untergrundaktivität zu vermeiden. Bei der Bestimmung der Effizienz müssen also folgende Korrekturen berücksichtigt werden:

- die vollständige Absorption beider Spaltfragmente in der Actinoidenschicht oder im Siliziumwafer,
- Spaltfragmente, deren induzierte Ladung oberhalb der Nachweisschwelle (Diskriminatorschwelle) liegt, die jedoch nicht vom Untergrund unterscheidbar sind, und
- Spaltfragmente, deren induzierte Ladungen unterhalb der elektronischen Nachweisschwelle liegen.

Innerhalb der beschriebenen Simulationen können alle diese Fälle berücksichtigt und so die Nachweiseffizienz direkt abgeschätzt werden.

In [Gayther, 1990] wird für die H19-Spaltkammer (siehe Kapitel 4.2) die Grenze zwischen  $\alpha$ -Teilchen und Spaltfragmenten so definiert, dass sie bei 45 % der häufigsten Spaltfragmentamplituden liegt. Bei den *n*ELBE-Kammern wurde eine andere Definition gewählt. In der Analyse der QDC-Spektren wurde die Grenze zwischen beiden Verteilungen in das Minimum zwischen ihnen gelegt.

Für beide Methoden wurde die Nachweiseffizienz der Plutoniumspaltkammer bestimmt. Die dabei gewonnenen Ergebnisse sind in Tabelle 4.1.3 zusammengefasst.

Die ermittelten Werte sind sowohl für die Gayther- als auch für die Minimum-Methode im Rahmen ihrer Unsicherheiten für die Vorwärtsrichtung identisch. Bei der rückwärtigen Feldkonfiguration unterscheiden sich die Ergebnisse teilweise erheblich. Während für die vorwärts gerichtete Anordnung die Effizienzen unabhängig vom Plattenabstand sind, lässt sich für die entgegengesetzte Felddausrichtung eine klare Abhängigkeit feststellen. Die Effizienzen sind dort für die hier betrachteten Abstände immer geringer und betragen für 10 mm Plattenabstand nur noch etwa  $\epsilon_{RB} \approx 74$  %. Aufgrund der konstanten und durchweg höheren Nachweiseffizienzen wird für die *n*ELBE-Kammer ein vorwärts gerichtetes elektrisches Feld vorgesehen.

**Tabelle 4.1.3:** Intrinsische Nachweiseffizienz  $\epsilon$  für Spaltfragmente der Plutoniumkammer in Abhängigkeit des Elektrodenabstandes  $D$ . Die aufgeführten Werte entstammen Geant 4-Simulationen und sind für zwei unterschiedliche Auswertemethoden jeweils für die vorwärts- (FB) und rückwärtsgerichtete Feldkonfiguration (RB) aufgelistet.

$D / \text{mm}$	„Gayther“-Methode		„Minimum“-Methode	
	$\epsilon_{\text{FB}} / \%$	$\epsilon_{\text{RB}} / \%$	$\epsilon_{\text{FB}} / \%$	$\epsilon_{\text{RB}} / \%$
5,0	98,8(5)	91,5(5)	97,9(10)	88,8(10)
7,5	98,6(5)	84,2(5)	98,2(10)	80,7(10)
10,0	98,8(5)	77,6(5)	98,6(10)	70,5(10)
12,5	98,7(5)	69,2(5)	98,5(10)	70,3(10)

### Signalformen und Anstiegszeiten

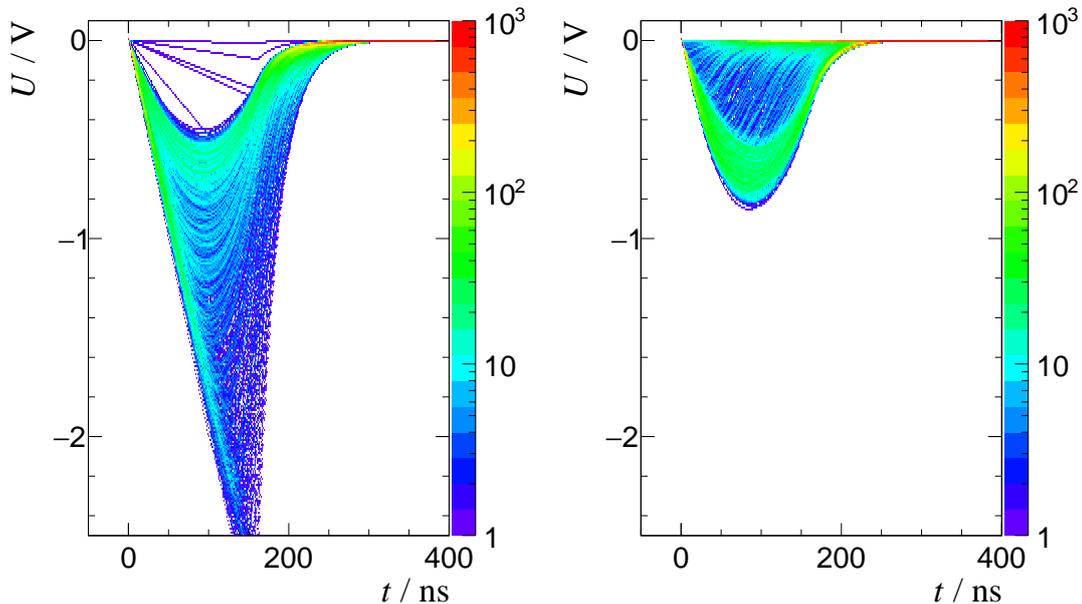
Obwohl die Vergrößerung des Plattenabstandes zu einer besseren Trennbarkeit der unterschiedlichen Teilchenspezies führt, vergrößern sich mit ihm jedoch auch die Driftzeiten der erzeugten Ladungsträgerpaare und damit im gleichen Maße auch die Anstiegszeiten der gemessenen Impulse. Im Hinblick auf die Qualität der gemessenen Signale führt das auf der einen Seite zu einer Erhöhung der Pile-up-Rate (vgl. Gleichung (4.1.1)) und auf der anderen Seite zu einer Verschlechterung der Zeitauflösung der Kammer. Letzteres kann man damit erklären, dass die Spaltfragmente aufgrund der geringeren Energie am Ende ihrer Trajektorie eher aus ihrer ursprünglichen Emissionsrichtung heraus gestreut werden als zu Beginn. Die Streuungen verursachen eine zusätzliche Varianz im Entstehungsort der Elektronen-Ionenpaare und beeinflussen damit auch die Anstiegszeit.

Aus der bereits beschriebenen Simulation lässt sich über Gleichung (4.1.5) der Verlauf des Signalanstiegs berechnen. Dazu sind zusätzlich zu den Größen aus Gleichung (4.1.4) nur die Elektronendriftgeschwindigkeit in P10  $\mu = 6,2 \text{ cm}/\mu\text{s}$  [Bortner et al., 1957] und die Verstärkung der Vorverstärker  $g = 5 \text{ V/pC}$  [Heidel, 2014] notwendig. Die Vorgehensweise war dabei ähnlich wie in Kapitel 4.1.5. Für den  $i$ -ten Trajektorienschnitt wurde über Gleichung (4.1.3) die Anzahl der erzeugten Ladungsträger am Ort  $z_i$  ermittelt. Für diese wurde erst die maximale Driftzeit  $t_d$  und dann für  $0 \leq t \leq t_d$  der resultierende Signalverlauf nach Gleichung (4.1.5) berechnet. Das Entladen des Vorverstärkers wurde hierbei durch ein exponentielles Abklingen des Impulses für  $t > t_d$  berücksichtigt. Die dazu verwendete Zeitkonstante des Vorverstärkers betrug 25 ns. Die Summe der Teilimpulse  $u_i(t)$  aller entlang der Teilchenbahn erzeugten Ladungsträgerpaare ist dann der in der Kammer messbare Spannungsimpuls  $U(t)$ .

$$u_i(t) = \frac{n_i e g \mu}{D} t \quad \text{für} \quad 0 \leq t \leq t_{d_i} \quad \text{und} \quad t_{d_i} = \begin{cases} \frac{D-z_i}{\mu} & \text{FB} \\ \frac{z_i}{\mu} & \text{RB.} \end{cases} \quad (4.1.5)$$

$$U(t) = \sum_i u_i(t) \quad (4.1.6)$$

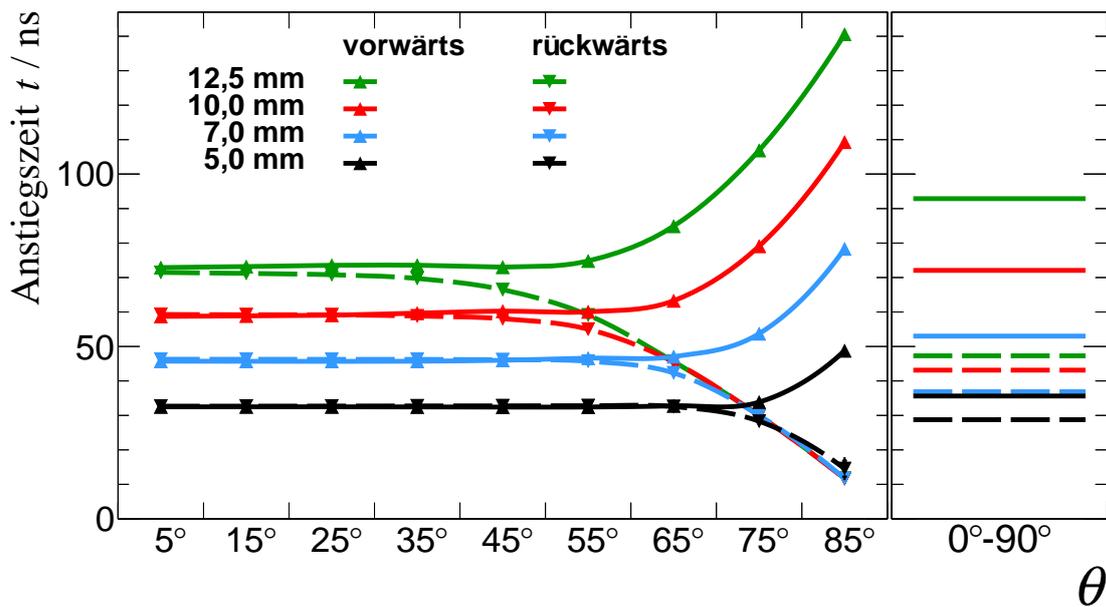
Die so berechneten Signalformen von 1.000 Spaltfragmenten sind in Abb. 4.1.17 für  $D = 10$  mm und beide Feldkonfigurationen sich überlagernd dargestellt. Die Signalamplituden des vorwärts gerichteten Feldes sind größer als die mit entgegengesetzter Richtung, variieren aber auch stärker. Betrachtet man die mittleren Anstiegszeiten (10 % - 90 %) rechts in Abb. 4.1.18, so lässt sich feststellen, dass Signale der rückwärtigen Anordnung schneller ansteigen. Interessant ist dabei jedoch, dass für beide Orientierungen von  $\vec{E}$  die Anstiegszeiten über einen großen Bereich gleich und unabhängig vom Emissionswinkel der Spaltfragmente sind. Verständlicherweise ist dieser Bereich für kleine Abstände größer als für größere. Je flacher<sup>9</sup> die Fragmente aus der Actinoidenschicht austreten, desto größer wird die Diskrepanz zwischen den Anstiegszeiten beider Konfigurationen.



**Abbildung 4.1.17:** Charakteristische Impulsformen der Spaltkammern simuliert mit Geant 4. Links:  $\vec{E}$ -Feld in „vorwärts“-Richtung. Rechts:  $\vec{E}$ -Feld in „rückwärts“-Richtung.

Im Hinblick auf die Wahl des optimalen Plattenabstandes musste also ein Kompromiss zwischen guter Zeitauflösung und gutem Signal-zu-Untergrundverhältnis getroffen werden.

<sup>9</sup>kleine Inklination bezüglich der Oberfläche der Actinoidenschicht



**Abbildung 4.1.18:** Vergleich der Anstiegszeiten (10 % - 90 %) zwischen vorwärts und rückwärts gepolter Feldanordnung in Abhängigkeit des Emissionswinkels der Spaltfragmente bezüglich der elektrischen Feldlinien.

Eine Analyse der generierten Signale mit einer digitalen Entsprechung eines Proportionaldiskriminators [Hannaske, 2008] ergab eine Verschlechterung der theoretisch erreichbaren Zeitauflösung von 1,0 ns bei 5 mm Plattenabstand auf 1,8 ns bei 12,5 mm. Im Vergleich zur Auflösung ähnlicher Ionisationskammern (z. B: H19  $\Delta t = 3$  ns) waren selbst 1,8 ns noch sehr gut, sodass zugunsten des besseren Signal-zu-Untergrund-Verhältnisses entschieden wurde. Mit einem Plattenabstand von **10 mm**, der resultierenden mittleren Anstiegszeit von 70 ns, einer Nachweiseffizienz von 98,8 % und einer maximalen Zeitauflösung von 1,27 ns konnten alle Anforderungen an die Plutoniumkammer erfüllt werden.

## 4.2 Die PTB $^{235}\text{U}$ Spaltkammer H19

Die  $^{235}\text{U}$ -Spaltionisationskammer H19 wurde im Jahr 1979 von den Harwell Laboratorien<sup>10</sup> im Rahmen einer internationalen Neutronenflussvergleichsmessung entwickelt [Gayther, 1990]. Derzeit befindet sie sich im Besitz der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (im Folgenden PTB) Braunschweig und wird dort als Neutronenflussnormal verwendet. Die H19 wurde als Transfergerät konzipiert und mehrfach unter großem Aufwand kalibriert [Gayther, 1990, Nolte et al., 2007, Nolte und Thomas, 2011]. Ihr Aufbau ist für Messungen in offenen Neutronenfeldern optimiert, aber ebenso für Experimente mit gepulsten Neutronenstrahlen geeignet. Eine technische Skizze der Kammer ist in Abbildung 4.2.1 zu sehen. Weitere Details zum Aufbau und den enthaltenen Spaltproben sind in allen hier

<sup>10</sup>Harwell Laboratory, Didcot, Oxon, OX11 0RA, United Kingdom

erwähnten Publikationen aufgeführt. Die für diese Arbeit wesentlichen Eigenschaften seien im Folgenden kurz zusammengefasst.

Um die Streuwirkung, vor allem in offenen Neutronenfeldern, gering zu halten, besteht das Gehäuse der H19 aus 550  $\mu\text{m}$  dünnem Edelstahl. Betrieben wird die Kammer mit P10 bei Atmosphärendruck unter permanentem Gasaustausch. Im Inneren befinden sich fünf Platinelektroden, welche beidseitig mit Uran beschichtet sind. Platin wurde aufgrund seiner inerten chemischen Eigenschaften als Strukturmaterial der Proben gewählt. Im Vergleich zu Materialien mit kleiner Ordnungszahl verläuft sein Streuquerschnitt aufgrund der höheren Niveaudichte deutlich flacher, was Streukorrekturen vereinfacht. Das gleiche gilt auch für Tantal, welches sowohl für die Ein- und Austrittsfenster der Kammer als auch für die Gegenelektroden verwendet wurde. Die zylindrischen Elektroden sind 125  $\mu\text{m}$  stark und haben einen Durchmesser von 86 mm. Die abgeschiedene Gesamtmasse an Uran beträgt  $(201,4 \pm 0,5)$  mg. Der Flächeninhalt der Uranproben entspricht  $F^{\text{H19}} = \frac{1}{4}\pi(7,6 \text{ cm})^2 \approx 45,4 \text{ cm}^2$ . Die aus beiden Größen resultierende Flächendichte ist dann  $m_A = 444,0 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Der Isotopenvektor des verwendeten Targetmaterials ist in Tabelle 4.2.1 aufgelistet.

**Tabelle 4.2.1:** Isotopenvektor der H19-Deposits von 1981. Die großen Halbwertszeiten aller enthaltenen Uranisotope haben im Rahmen der angegebenen Unsicherheiten bis heute noch zu keiner Veränderung geführt.

Isotop	Häufigkeit [Glover et al., 1982]
$^{234}\text{U}$	0,03620(20) %
$^{235}\text{U}$	99,9183(3) %
$^{236}\text{U}$	0,00940(10) %
$^{238}\text{U}$	0,03610(20) %

Die Eigenschaften der enthaltenen Uranproben wurden bereits in Tabelle 4.1.2 im direkten Vergleich zu den  $n\text{ELBE}$ -Deposits zusammengefasst.

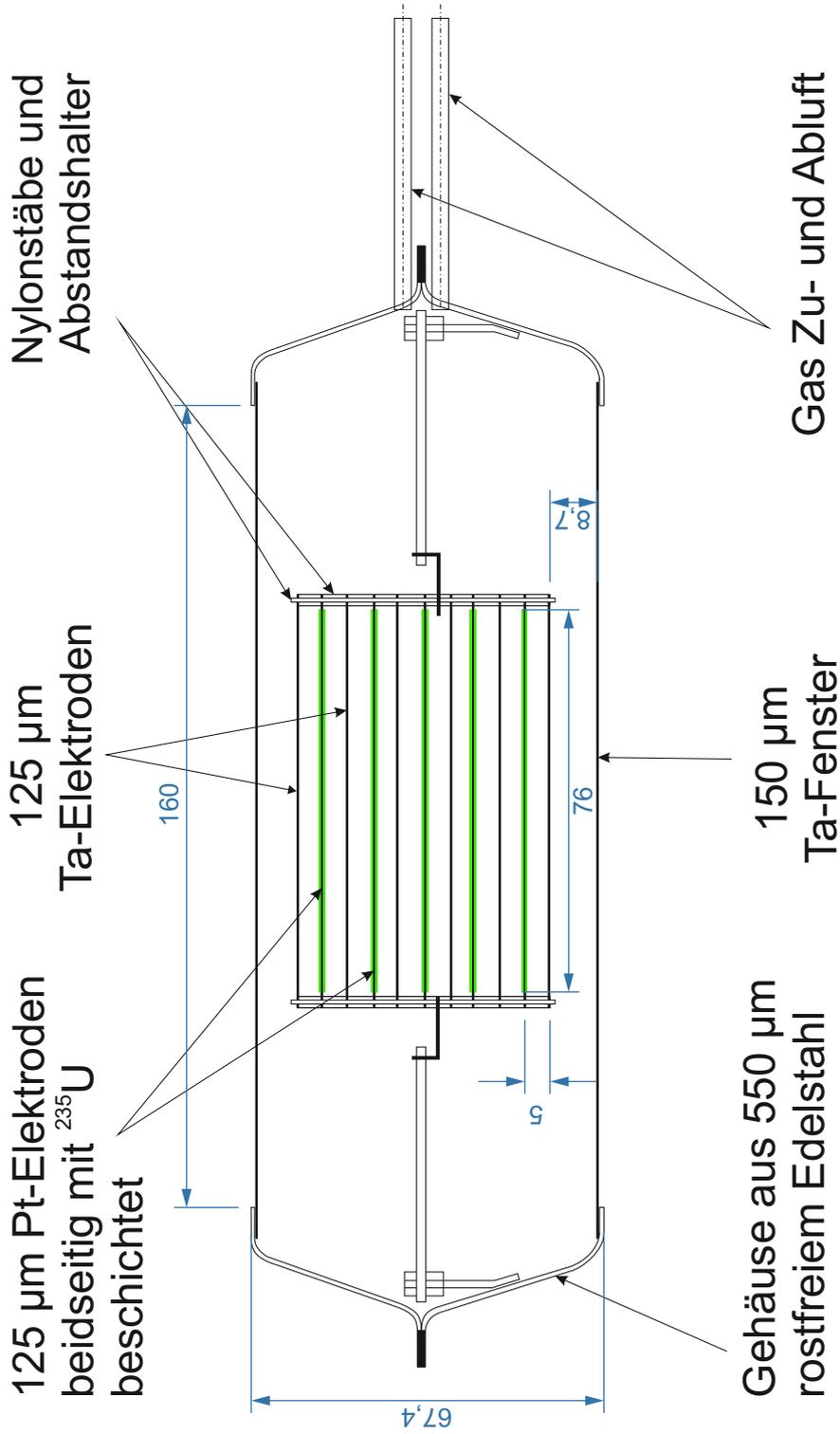


Abbildung 4.2.1: Technische Zeichnung des Aufbaus der Harwell H19 <sup>235</sup>U-Spaltkammer nach [Gayther, 1979].



## 5 Experimente zur Spaltung von $^{242}\text{Pu}$

*It doesn't matter how beautiful your theory is, it doesn't matter how smart you are. If it doesn't agree with your experiment, it is wrong.*

Richard P. Feynman

Das Ziel dieser Arbeit ist die präzise Bestimmung des energieabhängigen neutroneninduzierten Spaltwirkungsquerschnitts mit Unsicherheiten besser als 5 %. Zu dessen Bestimmung wurden im Rahmen dieser Arbeit mehrere Experimente geplant und durchgeführt. In Tabelle 5.0.1 sind diese zusammengefasst. Verwendet wurden dafür die in Kapitel 4.1 beschriebenen Spaltionsisationskammern.

**Tabelle 5.0.1:** Chronologischer Überblick über die durchgeführten Experimente zur Bestimmung des neutroneninduzierten Spaltquerschnitts von  $^{242}\text{Pu}$ . Gegenstand dieser Arbeit ist jedoch nur das November-Experiment.

Datum	Experiment	Anlage	Messgröße
12.2013	UFC vs. H19	$n\text{ELBE}$	Erprobung, $n_A^{\text{UFC}}$
05.2014	UFC	PIAF	Kalibrierung, $n_A^{\text{UFC}}$
06.2014	PuFC	PIAF	Kalibrierung, $n_A^{\text{PuFC}}$
06.2014	PuFC vs. UFC	$n\text{ELBE}$	$n_A^{\text{PuFC}}$ oder $\sigma_{(n,f)}^{\text{PuFC}}$
11.2014	PuFC vs. H19	$n\text{ELBE}$	$\sigma_{(n,f)}^{\text{PuFC}}$

Die  $^{235}\text{U}$ -Spaltkammer soll als Neutronenflussdetektor eingesetzt werden. Eine Charakterisierung der Flächenbelegung<sup>1</sup>  $n_A$  und der intrinsischen Nachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon$  ist deshalb durchzuführen.

Die Bestimmung der Flächenbelegung kann sowohl in einem Referenzneutronenfeld als auch durch  $\alpha$ -Spektroskopie in bekannter Geometrie erfolgen. Für die  $n\text{ELBE}$ -Spaltkammern wurde sie im kalibrierten Neutronenfeld des Ionenbeschleunigers PIAF der PTB Braunschweig bestimmt. Zur Berechnung dieser Größe ist jedoch die Kenntnis des Spaltquerschnitts selbst notwendig, wodurch die Messung ihre Eigenständigkeit verliert. Die Anzahl

<sup>1</sup>Die Flächenbelegung gibt die Anzahl der Probenkerne pro Flächeneinheit an und ist über den Proportionalitätsfaktor  $M/N_A$  (molare Masse durch Avogadrokonstante) mit der Massenbelegung  $m_A$  verknüpft.

der Targetatome lässt sich für  $^{242}\text{Pu}$  aber auch über die Spontanspaltung dieses Isotops bestimmen, worauf im Verlauf dieses Kapitels noch detailliert eingegangen wird.

An  $n\text{ELBE}$  wurden insgesamt drei Experimente zur Bestimmung des neutroneninduzierten Spaltquerschnitts durchgeführt. In einem ersten Experiment im Dezember 2013 konnten der verwendete Aufbau erprobt und die Uranspaltkammer charakterisiert werden. Zur Bestimmung des  $n\text{ELBE}$ -Neutronenflusses kam dabei das PTB-Transferinstrument H19 (siehe Kapitel 4.2) zum Einsatz. Mit Kenntnis der UFC-Flächenbelegung war es dann möglich, die einfallende Neutronenfluenz auf die PuFC genau zu bestimmen.

Im Anschluss an die Charakterisierung beider Kammern an der PTB Braunschweig im Mai und Juni 2014 konnte an  $n\text{ELBE}$  erstmals ein neutroneninduzierter Spaltquerschnitt von  $^{242}\text{Pu}$  relativ zum  $^{235}\text{U}$  der UFC bestimmt werden.

Gegenstand der weiteren Betrachtungen ist jedoch die dritte Messung vom November 2014. Hier wurde die auf die PuFC einfallende Neutronenfluenz erneut durch die H19 bestimmt. Da die H19 hinreichend genau charakterisiert ist, kann diese Messung als eigenständig angesehen werden und eignet sich deshalb besonders für die präzise Bestimmung des Spaltquerschnitts.

Der erste Teil dieses Kapitels gibt einen Überblick über die Bestimmung von Reaktionsquerschnitten relativ zu einer Referenzreaktion. Es schließt sich die Beschreibung des verwendeten Messaufbaus, der Datenaufnahme und -verarbeitung an. Das Unterkapitel 5.4 beschreibt, wie die aufgenommenen Messdaten analysiert wurden, um die Spontanspalt-rate und den Spaltquerschnitt zu bestimmen. Dabei wird auf wesentliche Korrekturen gesondert in Abschnitt 5.4.2 eingegangen. Am Ende des Kapitels werden die gewonnenen Ergebnisse zusammengefasst und im Vergleich mit älteren Messungen diskutiert.

## 5.1 Experimentelle Bestimmung neutroneninduzierter Spaltquerschnitte

### Allgemeine Definition

In der Kern- und Teilchenphysik ist es üblich, die Ausbeute einer bestimmten Reaktion auf die atomare Flächenbelegung des Targetmaterials zu normieren. Die so erhaltene Größe wird Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  genannt [Mayer-Kuckuk, 2002, S. 16]. Die Ausbeute definiert dabei das Verhältnis der Teilchen, welche eine Reaktion durchlaufen ( $N_r$ ), zur Anzahl der einfallenden Teilchen ( $N_{\text{in}}$ ).

Die differentielle Reaktionsrate kann mit Hilfe des Wirkungsquerschnitts und der Teilchen(volumen)dichte des Targetmaterials ( $N_V$ ) wie folgt dargestellt werden:

$$d\dot{N}_r = \sigma \dot{N}_{\text{in}}(x) N_V dx$$

Betrachtet man alle möglichen Reaktionen, so bedingt der Zuwachs der Reaktionsrate an der Stelle  $x$  dabei natürlich eine Abnahme im einfallenden Teilchenstrom  $\dot{N}_{\text{in}}$  für größere Eindringtiefen  $x + dx$ :

$$d\dot{N}_{\text{in}} = -\sigma_{\text{tot}} \dot{N}_{\text{in}}(x) N_V dx$$

Die Summe aller möglichen Reaktionsquerschnitte  $\sigma_r$  wird totaler Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{\text{tot}}$  genannt.

### Dünnes Target

Für ausgedehnte Targetmaterialien nimmt der einfallende Teilchenstrom  $\dot{N}_{\text{in}}$  also mit der Eindringtiefe  $x$  exponentiell ab. Aufgrund ihrer geringen Dicke ( $\approx 110$  nm) kann eine Abschwächung des Neutronenstrahls innerhalb der  $n\text{ELBE}$ -Actinoidentargets vernachlässigt werden. Das gilt jedoch nicht für die gesamte Spaltkammer und wird im Abschnitt 5.4.2 separat betrachtet. Die allgemeine Definition des Reaktionsquerschnittes für ebensolche dünne Targets<sup>2</sup> lautet:

$$\sigma_r = \frac{\dot{N}_r}{\dot{N}_{\text{in}}} \frac{1}{n_A} \quad (5.1.1) \quad \begin{array}{ll} \sigma_r & \dots \text{ Reaktionsquerschnitt} \\ \dot{N}_r & \dots \text{ Reaktionsrate} \\ \dot{N}_{\text{in}} & \dots \text{ Einfallende Teilchenrate} \\ n_A = N_V dx = \frac{N_T}{F} & \dots \text{ Flächendichte} \\ N_T & \dots \text{ Anzahl der Probenatome} \\ F & \dots \text{ vom Teilchenstrahl} \\ & \text{beschienene Probenfläche} \end{array}$$

### Relativmessung

Die Bestimmung des absoluten Reaktionsquerschnitts ist experimentell sehr herausfordernd. Neben der Nachweiseffizienz und der Anzahl der Probenkerne im zu untersuchenden Material muss auch die Anzahl der einfallenden Teilchen über den gesamten Verlauf des Experiments genau bekannt sein. Diese Anzahl kann man zum Beispiel über die zeitkorrelierte assoziierte Teilchenproduktion [[Arlt et al., 1980](#)] bestimmen.

<sup>2</sup>Hierbei wird davon ausgegangen, dass die Probe homogen und größer als der einfallende Teilchenstrahl ist. Auf Seite 74 wird darauf noch gesondert eingegangen.

Eine andere Möglichkeit besteht darin, bereits gut bestimmte Kernreaktionen zu nutzen, um den einfallenden Teilchenfluss zu messen. Man spricht dann aber von einer Bestimmung des Wirkungsquerschnitts relativ zur verwendeten Kernreaktion. Beispiele für solche Standardreaktionen des Neutronennachweises sind die elastische Streuung am Wasserstoff  $H(n,n)$ ,  $(n,\alpha)$ -Reaktionen an  $^{10}\text{B}$ , Austauschreaktionen an  $^3\text{He}$  sowie die neutroneninduzierte Spaltung von  $^{235}\text{U}$  [IAEA, 2007]. Zusätzlich hilft eine Relativmessung bezüglich eines hinreichend genau bekannten Referenzquerschnitts, eine Vielzahl systematischer Unsicherheiten zu eliminieren.

Aus Gleichung (5.1.1) folgt für den neutroneninduzierten Spaltquerschnitt des verwendeten Plutoniums ( $\sigma_{(n,f)}^{\text{PuFC}}$ ) relativ zu einer Referenzreaktion ( $\sigma_r^{\text{Ref}}$ ):

$$\frac{\sigma_{(n,f)}^{\text{PuFC}}}{\sigma_r^{\text{Ref}}} = \left( \frac{\dot{N}_{(n,f)}(E_n)}{\dot{N}_{\text{in}}(E_n)n_A} \right)^{\text{PuFC}} \bigg/ \left( \frac{\dot{N}_r(E_n)}{\dot{N}_{\text{in}}(E_n)n_A} \right)^{\text{Ref}} \quad (5.1.2)$$

Die neutronen-induzierten Reaktionsraten  $\dot{N}_{(n,f),r}$  sowie die einfallenden Teilchenraten  $\dot{N}_{\text{in}}$  hängen dabei jeweils von der Energie der einfallenden Neutronen  $E_n$  ab.

### Flächenbelegung

Mithilfe der Halbwertszeit<sup>3</sup> für Spontanspaltung (SF)  $T_{1/2,(\text{SF})}$  lässt sich die zunächst unbekannte Flächendichte  $n_A^{\text{PuFC}_i}$  jedes Plutoniumdeposits aus einer Messung der jeweiligen Spontanspaltrate  $\dot{N}_{(\text{SF})}^{\text{PuFC}_i}$  bestimmen (vgl. [Weigmann et al., 1985]).

$^{242}\text{Pu}$  besitzt im Vergleich zu anderen Isotopen ein relativ großes Verzweungsverhältnis für Spontanspaltung. Abbildung 5.1.1 gibt einen Überblick über die im Zeitraum von 1956 bis 2013 durchgeführten Messungen zur Bestimmung dieser Größe. Auf Grundlage der dort aufgeführten Resultate haben Holden und Hoffman die daraus resultierende partielle Halbwertszeit evaluiert. Der von ihnen angegebene Wert  $(6,77 \pm 0,07) \cdot 10^{10}$  a besitzt eine sehr geringe relative Standardunsicherheit von 1 %.

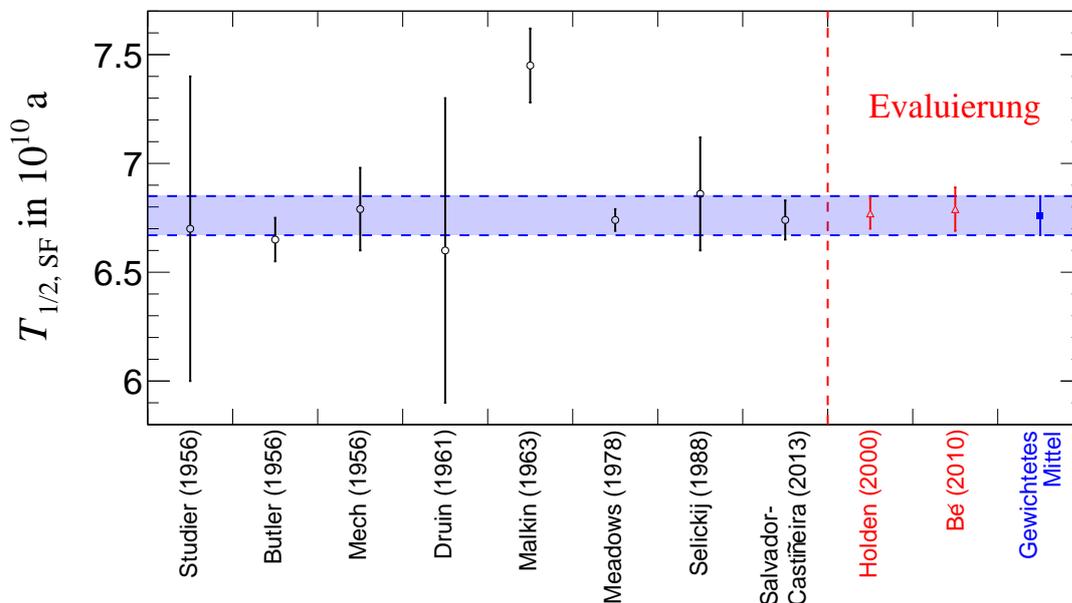
2010 wurde das SF-Verzweungsverhältnis erneut evaluiert. In [Bé et al., 2010, Chechev, 2009] ist  $T_{1/2,(\text{SF})} = (6,79 \pm 0,10) \cdot 10^{10}$  a und damit geringfügig höher als in [Holden und Hoffman, 2000]. Auch die zugehörige relative Unsicherheit ist mit 1,5 % etwas größer.

Die aktuelle Messung von Salvador-Castiñeira et al. zeichnet sich im Vergleich zu den vorherigen Messungen durch eine geringere statistische und systematische<sup>4</sup> Unsicherheit aus. In den zwei diskutierten Evaluierungen ist sie nicht enthalten. Deshalb wurde der

<sup>3</sup>In der Literatur wird oft eine (partielle) Halbwertszeit für Spontanspaltung angegeben. Diese Bezeichnung ist jedoch irreführend, da die Art des Zerfalls in der Definition der Halbwertszeit keine Rolle spielt. Im Hinblick auf spezielle Kernumwandlungen ist es besser, von Verzweungsverhältnissen zu sprechen.

<sup>4</sup>Abgesehen von der Messung von Meadows, der in [Meadows, 1978b] 0,5 % systematische Unsicherheiten angibt. Die systematischen Unsicherheiten von Salvador-Castiñeira et al. [2013] betragen 1,3 %.

Wert für die partielle SF-Halbwertsbreite im Rahmen dieser Arbeit neu bestimmt. Dabei wurde analog zur in [Bé et al., 2010] dargestellten Methodik vorgegangen. Der so ermittelte Wert beträgt  $(6,76 \pm 0,09) \cdot 10^{10}$  a.



**Abbildung 5.1.1:** Zusammenstellung gemessener partieller  $^{242}\text{Pu}$  Halbwertszeiten für Spontanspaltung und evaluierte Werte. Die experimentellen Daten sind der Evaluierung von [Holden und Hoffman \[2000\]](#) entnommen. Die von [Bé et al. \[2010\]](#) durchgeführte Neu-evaluierung besitzt eine etwas größere Unsicherheit. In Blau dargestellt ist das gewichtete Mittel aller aufgeführten Messungen unter Berücksichtigung der aktuellsten Messung von [Salvador-Castineira et al. \[2013\]](#). Der hellblaue Bereich kennzeichnet die kombinierte Standardunsicherheit (Standardabweichung) dieses Wertes (1,6 %).

Zur Bestimmung der Flächendichte  $n_A^{\text{PuFC}_i}$  nutzt man, dass:

$$n_A^{\text{PuFC}} = \frac{\sum_i N_T^{\text{PuFC}_i}}{F^{\text{PuFC}}} \stackrel{F^{\text{PuFC}} \equiv F^{\text{PuFC}_i}}{=} \sum_i n_A^{\text{PuFC}_i} \quad (5.1.3)$$

unter der Annahme, dass alle Deposits die gleiche Targetfläche  $F$  haben. Das ist durch den Abscheideprozess in einer Depositionszelle mit wohlbekannter Geometrie auf unter 3 % gewährleistet.

Das Zerfallsgesetz liefert mit dem Produkt aus Zerfallskonstante  $\lambda$  und Spontanspaltverzweigungsverhältnis  $\gamma$  dann:

$$n_A^{\text{PuFC}_i} = \left( \frac{\dot{N}_{(\text{SF})}}{\lambda \gamma F} \right)^{\text{PuFC}_i} \quad \text{mit:} \quad \lambda \gamma = \frac{\ln 2}{T_{1/2, (\text{SF})}} \quad (5.1.4)$$

Setzt man nun die Ergebnisse der letzten beiden Formeln (5.1.3) und (5.1.4) in (5.1.2) ein, so ergibt sich:

$$\frac{\sigma_{(n,f)}^{\text{PuFC}}}{\sigma_r^{\text{Ref}}} = \lambda\gamma F \left( \frac{\sum_i \dot{N}_{(n,f)}^i}{\dot{N}_{\text{in}} \sum_i \dot{N}_{(\text{SF})}^i} \right)^{\text{PuFC}} \bigg/ \left( \frac{\dot{N}_r}{\dot{N}_{\text{in}} n_A} \right)^{\text{Ref}} \quad (5.1.5)$$

Durch Multiplikation von Gleichung (5.1.5) mit dem Referenzquerschnitt  $\sigma_r^{\text{Ref}}$  ergibt sich ein Ausdruck zur Bestimmung des neutroneninduzierten Spaltquerschnitts von  $^{242}\text{Pu}$ :

$$\sigma_{(n,f)}^{\text{PuFC}} = \lambda\gamma F \left( \left( \frac{\sum_i \dot{N}_{(n,f)}^i}{\dot{N}_{\text{in}} \sum_i \dot{N}_{(\text{SF})}^i} \right)^{\text{PuFC}} \bigg/ \left( \frac{\dot{N}_r}{\dot{N}_{\text{in}} n_A} \right)^{\text{Ref}} \right) \sigma_r^{\text{Ref}} \quad (5.1.6)$$

An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, dass die Gleichungen (5.1.5) und (5.1.6) nur für ideale Detektoren gültig sind. Ein solcher Detektor weist alle stattfindenden Spaltungen nach, beeinflusst den einfallenden Neutronenstrahl jedoch auf keine andere Weise. Auf Absorption und Streuung von Neutronen im Detektor und die Berücksichtigung der sehr geringen Nachweiseffizienz des realen Detektors wird in Kapitel 5.4.2 noch ausführlich eingegangen.

## 5.2 Messaufbau

Ausgehend von Formel (5.1.6) des vorangegangenen Kapitels sind für die Messung des neutroneninduzierten Spaltquerschnitts von  $^{242}\text{Pu}$  folgende Messgrößen zu bestimmen:

- die Spontan- und neutroneninduzierte Spaltrate jeder Actinoidenschicht und die kinetische Energie der Neutronen,
- die Anzahl der Reaktionen in der Referenzprobe sowie
- die atomare Flächenbelegung des Referenzmaterials.

Alle weiteren Größen aus Formel (5.1.6) sind Konstanten und können Kerndatenbanken [Chu et al., 2004, IAEA, 2015] ( $\lambda$  und  $\gamma$ ) oder den Konstruktionszeichnungen der Depositionszelle (siehe A.1) entnommen werden ( $F$ ).

Unter Berücksichtigung der experimentellen Möglichkeiten von  $n\text{ELBE}$  (vgl. Kapitel 3) können alle oben genannten Größen in einem Flugzeitexperiment bestimmt werden. Dazu wird die Spaltrate mithilfe der unter Kapitel 4.1 erläuterten Plutonium-Spaltkammer ermittelt. Die kinetische Energie der einfallenden Neutronen ergibt sich über ihre Flugzeit, die über die Zeitdifferenz zwischen dem in der Spaltkammer detektierten Spalt ereignis

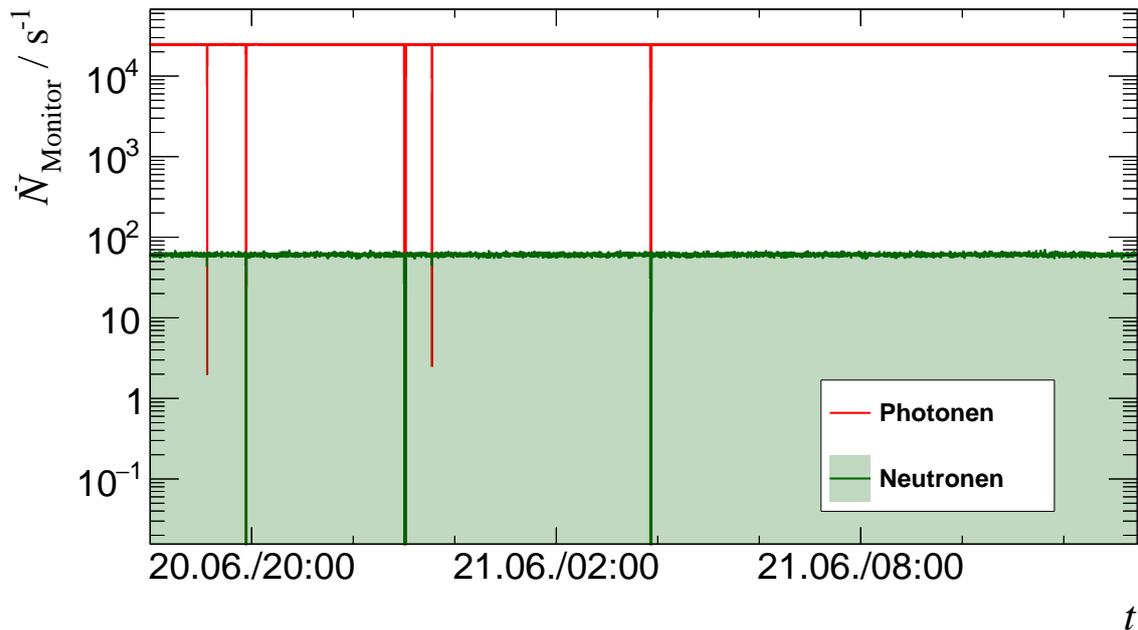
und der Mikropulsreferenz (Zeitreferenzsignal) des ELBE-Beschleunigers berechnet werden kann. Durch das Design der  $n$ ELBE-Spaltkammern kann der einfallende Neutronenstrom am Ort der Spalttargets leider nicht simultan im gleichen Detektor gemessen werden, da die Effizienz für den Nachweis von Neutronen unbekannt beziehungsweise die implizit zu bestimmende Größe ist. Man muss dazu also auf ein Normal, einen Detektor mit bekannter Neutronennachweiseffizienz, zurückgreifen. Da das  $n$ ELBE-Neutronenspektrum im Wesentlichen schnelle Neutronen beinhaltet (vgl. Abb. 3.0.4), der Detektor aber auch sensitiv auf Neutronen mit niedrigeren Energien sein soll (z. B. zur Bestimmung des rauminduzierten Untergrundes oder der Berücksichtigung von Spaltungen unterhalb der Spaltschwelle), muss sich die Sensitivität eines solchen Fluenznormals über einen großen Energiebereich erstrecken und sollte dort kein Schwellenverhalten aufweisen.

Durch ihr vergleichbar einfaches Funktionsprinzip und den einfachen Aufbau bieten sich auch für diesen Zweck Spaltionisationskammern an. Um die geforderte Sensitivität für thermische Neutronen zu gewährleisten, eignen sich besonders Isotope, bei denen nach Neutroneneinfang so viel Bindungsenergie frei wird, dass der entstandene Compoundkern spaltet. Beispiele für solche Targetmaterialien sind  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$ , wobei  $^{235}\text{U}$  als Referenzmaterial vorzuziehen ist, da es zu den IAEA-Standards für schnelle Neutronen zwischen 0,0253 eV und 1 GeV zählt.

Mit dem H19  $^{235}\text{U}$ -Transfergerät (vgl. Kapitel 4.2) stand eine solche Referenzkammer zur Verfügung, die in Zusammenarbeit mit der PTB Braunschweig betrieben wurde.

Die totale Effizienz des Nachweises schneller Neutronen ist bei Spaltionisationskammern mit etwa  $10^{-5}$  relativ niedrig, sodass nur die mittlere Intensität des Neutronenstrahls über lange Messzeiträume bestimmt werden kann. Die Stabilität des  $n$ ELBE-Strahls auf dieser Skala konnte aber in mehreren Experimenten gezeigt werden. Exemplarisch ist das für die Messzeit vom Juni 2014 in Abbildung 5.2.1 gezeigt. Mit einem Plastiksintillator wurde dort eine Flugzeitmessung durchgeführt, sodass in kurzen Intervallen von 10 s die Intensität gestreuter Neutronen und der begleitenden Bremsstrahlung bestimmt werden konnte.

In Abbildung 5.2.2 sind beide Spaltkammern im Experimentaufbau zu sehen. Um eine möglichst genaue Bestimmung des einfallenden Neutronenstroms zu gewährleisten, wurde die Referenzkammer 10 cm vor der Plutoniumkammer positioniert. Eine Abschwächung des Neutronenstrahls zwischen beiden Kammern durch Streuung an Luft konnte somit minimiert werden. Prinzipiell ist es egal, ob der Monitor vor oder nach dem Target positioniert wird. Die Verwendung von dünneren Tantalfenstern, von Platin und Tantal als Elektrodenmaterial sowie das massenreduzierte Design der H19 prädestinieren sie jedoch für eine Position direkt vor der Plutoniumkammer. Platin und Tantal besitzen als nicht-magische, massereiche Kerne eine hohe Niveaudichte [Egidy und Bucurescu, 2005]. Der totale Streu-

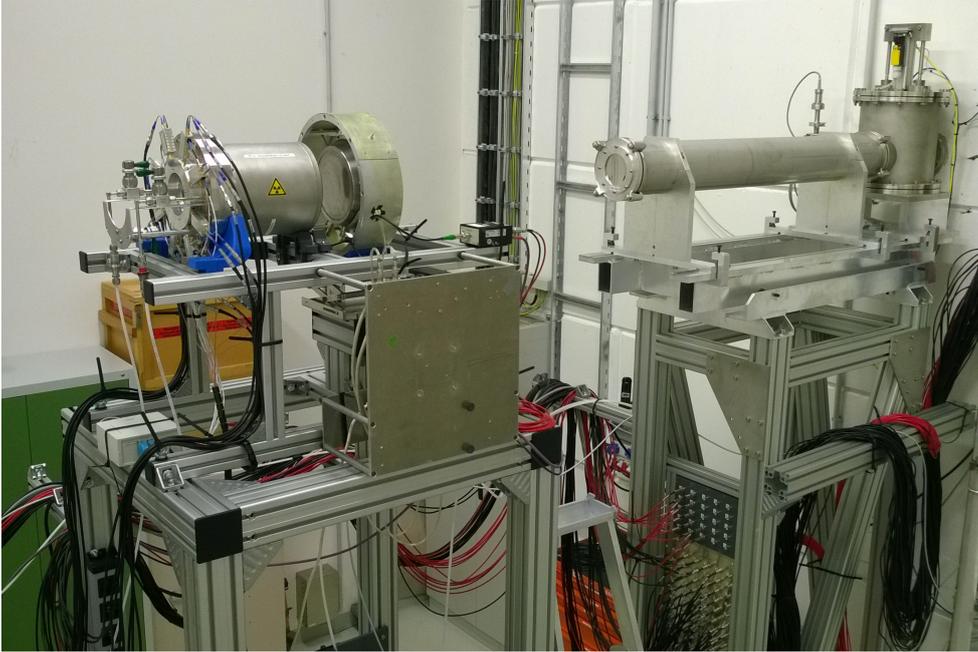


**Abbildung 5.2.1:** Stabilität des  $n$ ELBE-Neutronenstrahls gemessen im Juni 2014. Als Strahlmonitor diente ein Plastikszintillator, der durch seine hohe Nachweiseffizienz Strahlschwankungen über einige Sekunden integriert detektieren kann. Der Detektor befand sich bei dieser Messung außerhalb des Strahls, da die Datenrate für die Ausleseelektronik sonst zu hoch gewesen wäre. Der Fluss gestreuter Neutronen nahe des Strahls skaliert aber mit dessen Intensität und kann deswegen auch zur Überwachung verwendet werden. Die vereinzelten Einbrüche der Zählraten wurden durch kurze Unterbrechungen des Experimentierbetriebs verursacht. Eine ausführliche Beschreibung der  $n$ ELBE-Plastikszintillatoren kann Ref. [Beyer et al., 2007] entnommen werden.

querschnitt beider Kerne hat dadurch eine flache Struktur im Bereich schneller Neutronen mit überlappenden Resonanzen. Zusätzlich verlieren Neutronen, welche an diesen schweren Kernen elastisch streuen, nur wenig Energie. Somit bleiben Form und Intensität des Neutronenspektrums nahezu erhalten. Die in der Plutoniumkammer verwendeten Si-Wafer haben im Vergleich einen etwas größeren Einfluss auf das einfallende Neutronenspektrum. Auf die Streuwirkung beider Spaltkammern wird aber noch gesondert in Kapitel 5.4.2 eingegangen.

Bei der Festlegung des Abstandes beider Spaltkammern bezüglich der Neutronenquelle müssen zwei Aspekte beachtet werden:

1. Die Energieauflösung der Detektoren sollte so hoch wie möglich sein und
2. Korrekturen infolge von Neutronenstrahl- und Targetinhomogenitäten müssen vermieden oder minimiert werden.



**Abbildung 5.2.2:** Foto vom experimentellen Aufbau der Strahlzeit 11.2014. Der Neutronenstrahl tritt von rechts kommend in die Flugzeithalle ein, verlässt das Vakuumstrahlrohr durch ein 25  $\mu\text{m}$  dickes Titanfenster und trifft dann auf die beiden Spaltionskammern (PuFC links, H19 rechts).

Die Energieauflösung  $\Delta E_n$  in Neutronenflugzeitexperimenten kann durch

$$\begin{aligned} \Delta E_n &= \sqrt{(m_n c^2)^2 \frac{\beta^4 \gamma^6}{L^2} \Delta L^2 + (m_n c^2)^2 \frac{\beta^4 \gamma^6}{t^2} \Delta t^2} \\ &= m_n c^2 \beta^2 \gamma^3 \sqrt{\frac{\Delta L^2}{L^2} + \frac{\Delta t^2}{t^2}} \end{aligned} \quad (5.2.1)$$

ermittelt werden.  $\Delta L$  und  $\Delta t$  beschreiben hierbei die Unsicherheiten in der Bestimmung der Flugstrecke  $L$  und der Flugzeit  $t$ . Bei  $\beta$  und  $\gamma$  handelt es sich um die üblichen Bezeichner innerhalb der Lorentz-Transformation. Die Größe  $m_n c^2$  ist dann die Ruheenergie (auch Ruhemasse) des Neutrons. Nach Gleichung (5.2.1) gilt: je größer die Flugstrecke, desto besser die Auflösung (vgl. Fig. 19 in [Beyer et al., 2013]).

Der zweite Aspekt der obigen Auflistung ist dabei aber ein limitierender Faktor. Die in Gleichung (5.1.2) angegebenen Neutronenströme und Flächenbelegungen wurden dort bezüglich ihrer räumlichen Verteilung als homogen angenommen. Im Allgemeinen kann jedoch davon ausgegangen werden, dass sowohl Neutronenstrahl als auch die Targets Inhomoge-

nitäten aufweisen. In [Beyer et al., 2013, Fig. 5] ist eine Messung des  $n$ ELBE<sup>5</sup>-Strahlprofils für zwei unterschiedliche Flugstrecken dargestellt. Dort erkennt man, dass es am Rand des Strahls zu Abweichungen von der idealisierten Form und homogenen Dichteverteilung eines divergenten Strahls kommt.

Über die Homogenität der Plutoniumtargets wurde im Kapitel 4.1.1 schon berichtet. In Abbildung 4.1.4 sind radiografische Aufnahmen der <sup>242</sup>Pu-Targets abgebildet, aus denen sich Rückschlüsse auf deren Homogenität ziehen lassen. Sie zeigen, dass die in Mainz hergestellten Targets eine exzellente, wenn auch nicht perfekt homogene Aktivitätsverteilung besitzen [Vascon et al., 2015].

Bei der Wahl des Probendurchmessers im Vergleich zur Größe des einfallenden Neutronenstrahls können Korrekturen infolge von Inhomogenitäten jedoch vermieden werden. Das soll im Folgenden anhand von zwei Alternativen erläutert werden.

1. **Die Durchmesser der Actinoidenschichten sind kleiner als der des Neutronenstrahls.** Für diesen Fall ist die Homogenität der Targets belanglos, da sich bei bekannter Flächenbelegung alle Targetatome im Strahl befinden. Bei der Integration über die gesamte Probenoberfläche mitteln sich Inhomogenitäten in der Flächenbelegung heraus und spielen damit im weiteren Verlauf keine Rolle mehr. Die räumliche Form und Entwicklung des einfallenden Strahls muss jedoch bei dieser Variante bekannt sein. Da es sich beim  $n$ ELBE-Strahl um einen divergenten Strahl handelt, nimmt die Teilchenflussdichte strahlabwärts kontinuierlich ab. Hinzukommende Randeffekte („Strahl-Halo“) können eine exakte Bestimmung der einfallenden Neutronenzahl zusätzlich erschweren.
2. **Die Durchmesser der Actinoidenschichten sind größer als der des Neutronenstrahls.** Im Gegensatz zum ersten Fall kann die Homogenität des Neutronenstrahls hier vernachlässigt werden, da die Referenzkammer alle einfallenden Neutronen nachweisen könnte. Über Inhomogenitäten am Rand wird hier ebenso gemittelt, sodass ihr Einfluss auf das Ergebnis vernachlässigbar klein ist. Es muss jedoch sichergestellt werden, dass auch alle Actinoidenschichten nach der Referenzkammer ebenfalls noch größer sind als der Strahl. Zusätzlich ist es hier notwendig, genaue Kenntnis über die Homogenität der zu untersuchenden Targets zu haben oder von Anfang an nur homogene Targets zu verwenden. Während die Homogenität der  $n$ ELBE-Targets einzeln schon gut ist (vgl. Abbildung 4.1.4 (a)), gleichen sich Inhomogenitäten in ihrer

---

<sup>5</sup>Hierbei handelt es sich um eine Messung in der früheren  $n$ ELBE-Messhalle. Das dort ermittelte Strahlprofil sollte jedoch aufgrund des gleichen Kollimatoraufbaus vergleichbar zum Strahlprofil der neuen Messhalle sein.

Summe fast vollständig aus. Das ist qualitativ in Abbildung 4.1.4 (b) zu sehen und kann mit Abbildung 4.1.5 (b) sogar quantifiziert werden. Demnach liegt die mittlere quadratische Abweichung der relativen Unterschiede im Aktivitätsprofil aller  $^{242}\text{Pu}$ -Targets bei  $(3,25 \pm 0,11) \%$ .

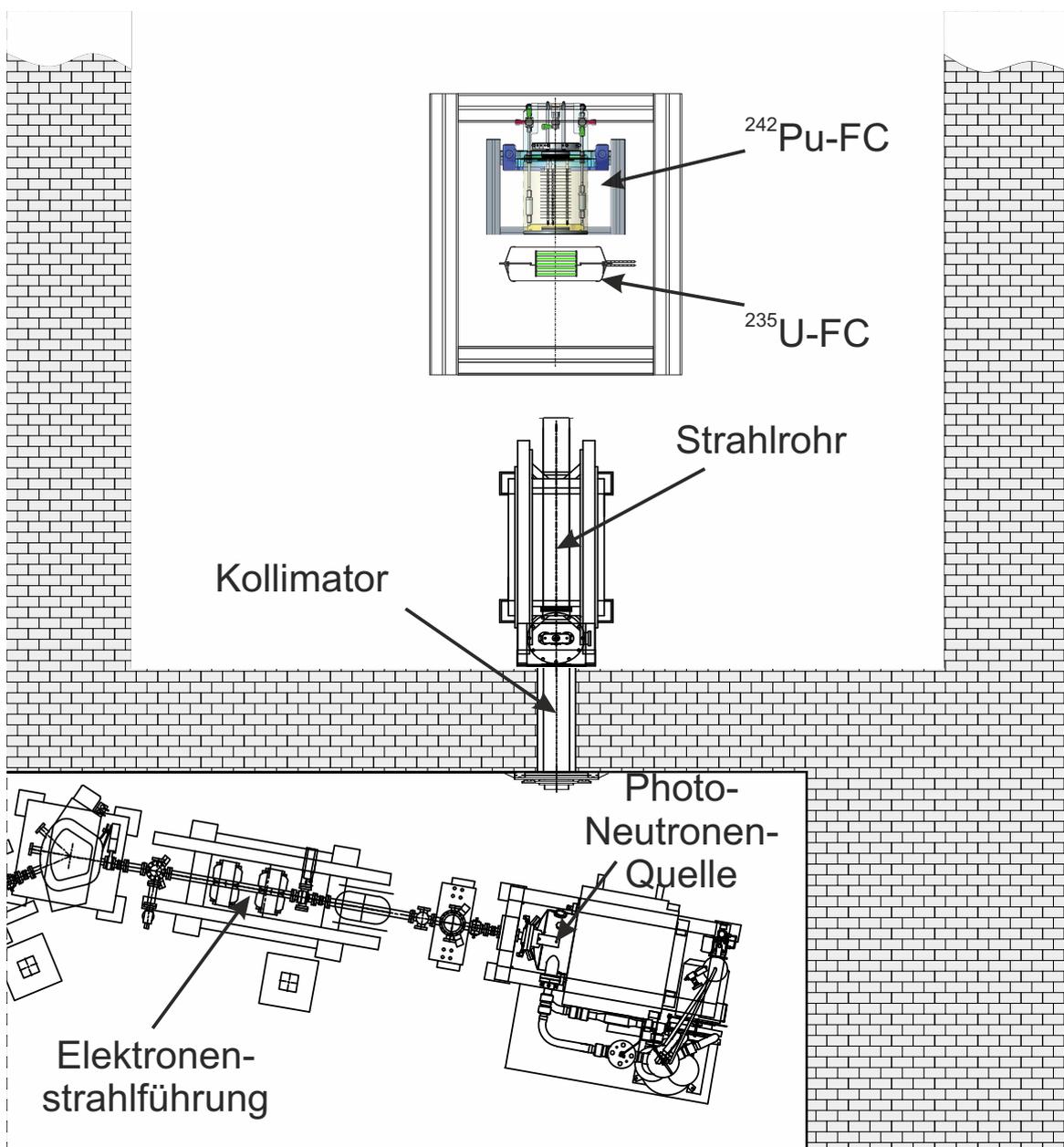
Aufgrund der hervorragenden Qualität der eingesetzten Deposits wurde letztere Variante gewählt. Limitierend für die Wahl des richtigen Abstandes zur Neutronenquelle war dann nur der Durchmesser der Pu-Targets, da dieser mit 74 mm 2 mm kleiner war als der Durchmesser der H19-Targets.

In Anbetracht der räumlichen Gegebenheiten entschieden wir uns für einen Abstand, bei welchem das letzte Actinoidentarget der Plutoniumkammer einen Abstand von  $(630,4 \pm 0,2)$  cm zur Neutronenquelle hatte. Der Neutronenstrahl hat an dieser Stelle einen Durchmesser von 56 mm (vgl. Abbildung 3.0.5), was uns eine Toleranz von etwa einem Zentimeter auf jeder Seite bei der Justage der Kammer ließ.

Beide Spaltkammern wurden auf einem Gestell montiert und mittels selbstnivellierender LASER auf die Strahlachse justiert. Der Abstand der H19 zum Photoneutronentarget wurde mit einem LASER-Distanzmessgerät ermittelt.

Die Position jedes Plutoniumdeposits relativ zur Quelle konnte anhand der Entfernung vom H19-Austrittsfenster zum PuFC-Eintrittsfenster und den Dimensionen innerhalb der Pu-Kammer aus den Konstruktionszeichnungen ermittelt werden. Die dabei auftretenden Unsicherheiten der Entfernungsmessung sind kleiner als 2 mm.

Ein Schema des Versuchsaufbaus ist in Abbildung A.4.1 des Anhangs A.4 dargestellt. Sie zeigt den ELBE-Raum 111b samt Elektronenstrahlführung, die Photoneutronenquelle, den Kollimator in der Wand zwischen den Räumen 111b und 125 und die gesamte  $n\text{ELBE}$ -Experimentierhalle. In dieser sind das Strahlrohr, die Spaltkammern samt ihres Gestells, der Experimentieraufbau zur Bestimmung von inelastischen Streuungen und Winkelverteilungen sowie der Strahlscanner abgebildet. Eine detailliertere Darstellung der für diesen Versuch relevanten Komponenten ist in Abbildung 5.2.3 zu sehen.



**Abbildung 5.2.3:** Experimenteller Aufbau des hier diskutierten Experiments zur Bestimmung des neutroneninduzierten Spaltquerschnitts von  $^{242}\text{Pu}$ . Die Darstellung ist nicht maßstäblich. Eine maßstabgerechte Darstellung des Versuchsaufbaus kann Abbildung A.4.1 entnommen werden.

**Tabelle 5.2.1:** Gemessene und berechnete Abstände der Spaltkammern und ihrer Bezugspunkte zum Strahlrohrfenster und zur Neutronenquelle. Die Unsicherheiten aller Werte können auf 2mm abgeschätzt werden.

	↔ Strahlrohrfenster / mm	↔ Neutronenquelle / mm
Strahlrohrfenster		5117
Eintrittsfenster	830	5947
1./ 2. Deposit	844	5961
H19 :		$+i \cdot 10, 125$
9./ 10. Deposit	885	6001
Austrittsfenster	897	6014
Eintrittsfenster	997	6114
1. Deposit	1042	6159
PuFC :		$+i \cdot 20, 5$
8. Deposit	1187	6304
Austrittsfenster	1229	6346
Messpunkt (MP)	2683	7800

## Strahlparameter

Um eine möglichst hohe neutroneninduzierte Spaltrate in den Spaltkammern zu erzielen, wurden die ELBE-Elektronenstrahlparameter im Rahmen dieser Arbeit hinsichtlich maximaler Neutronenfluenz und bestmöglicher Strahlstabilität gewählt. Die wesentlichen Elektronenstrahlparameter sind dafür:

- die kinetische Energie der Elektronen  $E_e$ ,
- die Ladung pro Elektronenbunch  $Q_e$  und
- die Wiederholrate des Beschleunigers  $f_{ACC}$ .

Unabhängig von diesen Parametern, aber ebenfalls wichtig für das erzeugte Spektrum, ist die Verwendung diverser Absorber im Strahl zwischen Neutronenradiator und Versuchsaufbau.

Der Einfluss der erwähnten Parameter auf die Eigenschaften des Neutronenspektrums wird im Folgenden genauer erläutert.

**Kinetische Energie  $E_e$**  Die Produktion der Photoneutronen zeigt bezüglich der Elektronenstrahlenergie ein Schwellenverhalten [Holt et al., 1979]. Die kinetische Energie der Elektronen, die die Bremsstrahlung erzeugen, muss größer sein als die Neutronenseparationsenergie im Blei (für  $^{208}\text{Pb}$ :  $S_n \approx 7,4 \text{ MeV}$ , [Martin, 2007]). Zur effizienten Produktion von Neutronen sollte die Energie jedoch deutlich oberhalb der Dipol-Riesenresonanz liegen. Bei Energien oberhalb dieser Resonanzenergie ( $^{208}\text{Pb}$ :  $E_\gamma \approx 13 \text{ MeV}$ , [Schwengner et al., 2010]) ist die integrale Photonenausbeute am größten. Bei noch höherer Energie ist der Gewinn an Neutronen nur noch durch das Öffnen weiterer Reaktionskanäle ( $\gamma, xn$ ) zu erreichen. Während eine Erhöhung der Strahlenergie von 20 auf 30 MeV die integrale Neutronenausbeute um einen Faktor 2,3 erhöht, wächst die Ausbeute bei einer Steigerung von 30 auf 40 MeV nur noch um das 1,5-fache (siehe dazu [Klug et al., 2007]). Für solch hohe Energien ändert sich die Form des Neutronenspektrums nur noch geringfügig. Dabei werden höhere Zustände in den Bleikernen bevölkert, was zu einer Verschmierung des Neutronenspektrums führt. Für Energien in der Nähe von  $S_n$  verlieren die Zustände des Kontinuums an Gewicht und führen so zu einer verstärkten Ausprägung einer resonanten Struktur im Neutronenspektrum bei Energien unterhalb von 1 MeV. Für die hier beschriebene Messung wurde die maximale zur Verfügung stehende Elektronenstrahlenergie von **30 MeV** genutzt.

**Ladung  $Q_e$**  Die sogenannte Bunchladung beschreibt die Ladung eines beschleunigten Elektronenpaketes. Sie ist proportional zum Kathodenstrom des Injektors. Strahlverluste reduzieren sie geringfügig auf dem Weg vom Injektor zur Neutronenquelle. Ein geringer Strahlverlust ist ein Maß für die Güte des Elektronenstrahls. Die Anzahl der im Blei abgebremsten Elektronen ist proportional zur Anzahl der erzeugten Bremsstrahlungsphotonen (Kramerssche Regel, [Koch und Motz, 1959, Kramers, 1923]) und damit auch zur Anzahl der erzeugten Neutronen. Eine möglichst hohe Bunchladung ist für eine große Neutronenfluenz also vorteilhaft. Die maximal bereitgestellte Bunchladung für dieses Experiment betrug am Injektor **83 pC**.

**Wiederholfrequenz  $f_{\text{ACC}}$**  Der erzeugte ELBE-Elektronenstrom ist proportional zur gewählten Wiederholrate des Elektronenstrahls und damit sind es auch Bunchladung und Neutronenfluenz. Da die Neutronenevaporation in Zeiträumen von  $\approx 10 \cdot 10^{-18} \text{ s}$  abläuft, spielt sie für die Dynamik dieser Kernreaktion keine bedeutende Rolle. Bei zu hoher Wiederholrate und zu kurzen Neutronenflugstrecken kann es jedoch zur Pulsüberlappung kommen. Dabei erreichen die schnellsten Neutronen eines Neutronenpulses zeitgleich oder eher das Target als die langsamsten des vorangegangenen.

Eine eindeutige Zuordnung einer kinetischen Energie zur bestimmten Flugzeit dieser Neutronen ist dann nicht mehr möglich.

Aufgrund der Spaltbarriere von  $^{242}\text{Pu}$  ist bei dieser Abschätzung die H19 entscheidend. Die schnellsten Neutronen im  $n\text{ELBE}$ -Spektrum haben kinetische Energien von etwa 20 MeV. Bei 40 keV hat die Neutronenfluenz ein so geringes Niveau erreicht, dass sie vom Raumuntergrund kaum noch unterscheidbar ist. Die Flugzeit bis zum letzten  $^{235}\text{U}$ -Deposit der H19 beträgt für diese Energie  $t_{\text{ToF}}(E_n = 40 \text{ keV}) = 2.170 \text{ ns}$ . Die Bremsstrahlung benötigt dafür nur 20 ns. Die maximale Beschleunigerperiode beträgt also etwa 2.150 ns, was einer Wiederholfrequenz von 465 kHz entsprechen würde. Aufgrund der festgelegten Untersetzung ( $26 \text{ MHz}/2^n, n = 0, 1, 2, \dots$ ) des ELBE-Strahls wurde eine Wiederholrate von **406,250 kHz** gewählt.

**Absorber** Ein Teil der Bremsstrahlungspotenten erreicht durch den Kollimator ebenfalls die Experimentierhalle und kann von den Detektoren nachgewiesen werden. Während die Neutronen die Quelle isotrop verlassen, ist Bremsstrahlung bei den verwendeten relativistischen Elektronenenergien stark in Vorwärtsrichtung fokussiert [Schiff, 1946]. Die Platzierung des Kollimators unter  $100^\circ$  reduziert den Anteil der Photonen im Strahl beträchtlich, dennoch ist das Verhältnis von Photonen zu Neutronen im Strahl noch etwa 1.450:1 [Klug et al., 2007]. Besonders bei Transmissionsexperimenten führt dieser Überschuss an Photonen zu flugzeitabhängigen Zählratenverlusten [Hannaske et al., 2013, Abschnitt 4.1]. Die Verwendung von Blei-, Gold- oder Wolfram-Absorbern am Eingang des Kollimators kann dieses Verhältnis zugunsten der Neutronen verschieben. Leider wird durch den Absorber auch ein Teil der Neutronen aus dem Strahl gestreut, der dem Experiment dann nicht mehr zur Verfügung steht. Da die totale Photonennachweiseffizienz in den Spaltkammern ebenfalls sehr gering ist, treten hohe Zählraten nicht auf. Um die maximale Neutronenintensität der Quelle zu erhalten, wurde daher **ohne Absorber** gemessen.

Nach der Beschreibung der Montage und Positionierung der zwei Spaltkammern im Experimentieraufbau und der Wahl geeigneter Elektronenstrahlparameter enthalten die beiden folgenden Kapitel Einzelheiten zur Aufnahme, Verarbeitung und Analyse der von den Detektoren erzeugten Messsignale.

## 5.3 Datenaufnahme und -verarbeitung

Grundlage eines jeden kernphysikalischen Experiments ist die Auswertung der durch den Detektor bereitgestellten Informationen über die zu bestimmende Messgröße. Die Datenaufnahme/-verarbeitung hat dabei die Aufgabe, diese Informationen aus den Rohsignalen zu extrahieren, aufzubereiten und möglichst vollständig und zuverlässig abzuspeichern.

Die für dieses Experiment relevanten Messgrößen sind:

1. der Zeitpunkt (schneller Zweig) und
2. die Impulshöhe beziehungsweise die Gesamtladung (spektroskopischer Zweig)

der Spaltkammersignale.

Die zeitliche Signatur des Detektorsignals soll dazu genutzt werden, die Flugzeit des Teilchens zu bestimmen, welches eine Spaltung im Targetmaterial verursacht hat. Auf diese Weise können neutroneninduzierte Spaltungen von photoneninduzierten separiert und die kinetische Energie der spaltenden Neutronen bestimmt werden. Das Ladungssignal hingegen kann dazu verwendet werden, die Art des ionisierenden Teilchens zu bestimmen. Spaltfragmente induzieren durch ihre hohe kinetische Energie und ihr höheres Ionisationsvermögen deutlich mehr Ladung als die beim radioaktiven Zerfall des Targetmaterials entstehenden  $\alpha$ -Teilchen. Diese Eigenschaft kann genutzt werden, um Spalt- von Untergrundereignissen zu unterscheiden.

Die in den Detektoren durch Ionisation erzeugten Signale eignen sich aufgrund ihrer geringen Amplituden noch nicht für eine direkte Analyse. Sie müssen erst durch rauscharme ladungsempfindliche Vorverstärker vergrößert werden. Während das akkumulierte Signal aller 10 Anoden der H19 von einem konventionellen Vorverstärker (Canberra Modell 2006E) verstärkt wird, werden die acht Anoden der Plutoniumspaltkammer jeweils separat durch die in Kapitel 4.1 beschriebenen „ns-Vorverstärker“ ausgelesen.

Um den oben genannten Anforderungen gerecht zu werden, wurde eine Datenverarbeitung entwickelt, deren VME<sup>6</sup>-Module von einer MBS<sup>7</sup>-basierten Datenaufnahme initialisiert und ausgelesen werden. MBS ist ein an der GSI Darmstadt entwickeltes Softwarepaket, welches neben Auslese und Initialisierung zusätzlich Routinen zur Verwaltung des VME-Datenstroms und dessen Speicherung in List-Mode-Dateien beinhaltet. Während der Datenaufnahme kann der Datenstrom zeitgleich durch ein Monitorprogramm (z. B. Lean easy Analysis (LeA) [Essel, 2002] oder Go4 [Adamczewski-Musch et al., 2015]) analysiert

<sup>6</sup>Versa Module Eurocard, [Peterson, 1997]

<sup>7</sup>Multi-Branch System, [Essel und Kurz, 2010]

werden. Der Aufbau dieser Signal- und Datenverarbeitung ist in Abbildung 5.3.1 vereinfacht dargestellt und soll hier kurz beschrieben werden.

Um sowohl Ladung als auch die Zeitinformation der Signale zu bestimmen, werden die verstärkten Impulse beider Spaltkammern jeweils auf zwei Signalwege verteilt.

### Ladungsbestimmung

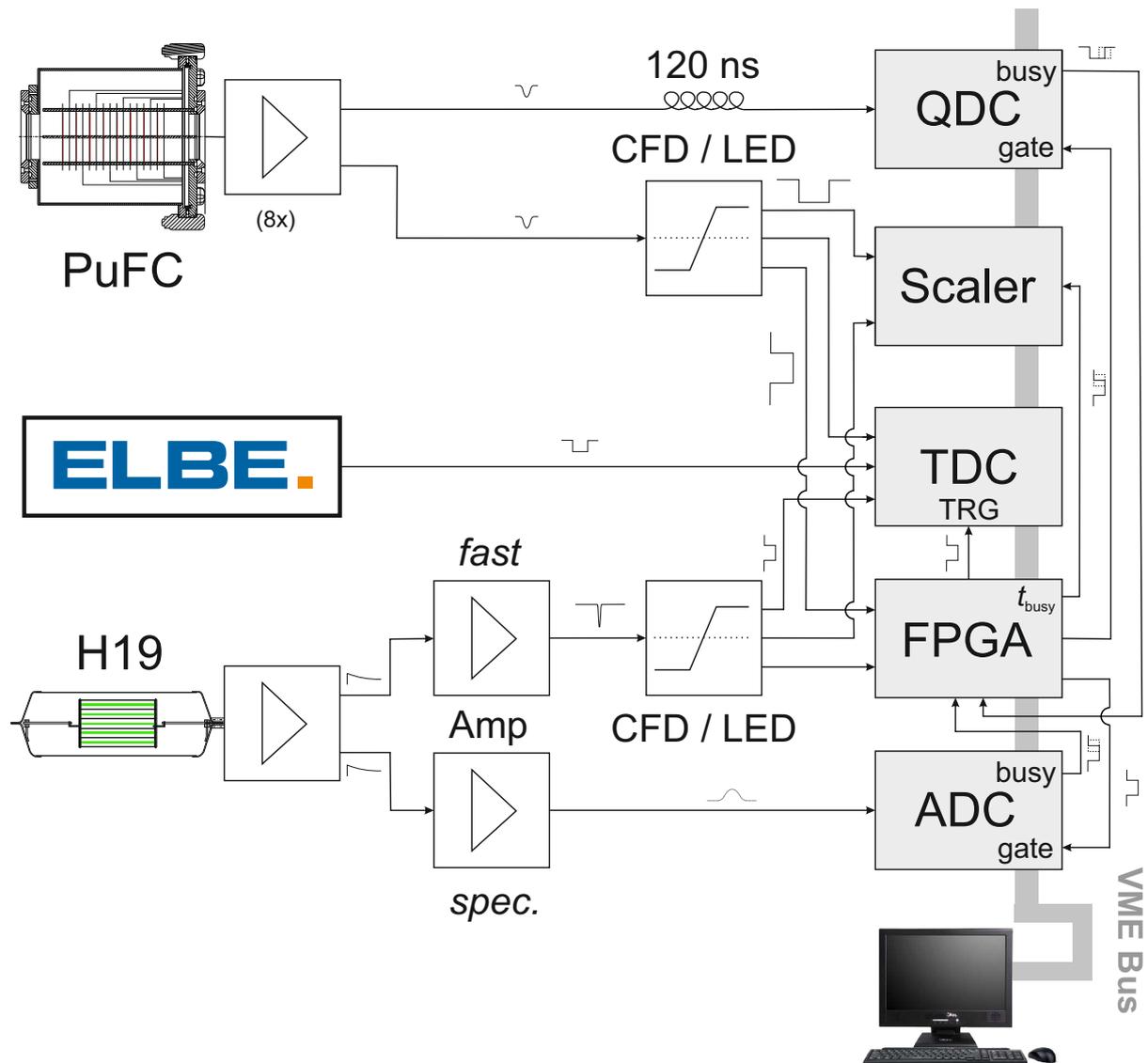
Die kurzen Impulsformen ( $\approx 300$  ns) der „ns-Vorverstärker“ (siehe Abbildung 5.3.2 rechts) ermöglichen eine direkte Bestimmung der im Signal enthaltenen Ladung in einem Ladung-zu-Digital Wandler (CAEN V965A, im Weiteren QDC). Die Integrationszeit dieses Moduls wurde anhand der statistischen Impulsbreitenverteilung von  $^{242}\text{Pu}$ -Spontanspaltereignissen ermittelt und betrug 400 ns. Die um mehrere Größenordnungen längeren Abklingkonstanten des H19-Vorverstärkers (Abbildung 5.3.2 links) machen jedoch eine andere Behandlung notwendig.

Die H19 wird mit einem normalen, hochauflösenden Spektroskopiesystem ausgelesen. Eine vollständige Integration der mehrere hundert Mikrosekunden langen Signale konventioneller Vorverstärker in einem QDC ist unpraktikabel. Während der Entladungszeit des Vorverstärkers können weitere Impulse zu einem erneuten Anstieg des Signals führen und damit die Ladungsinformation verfälschen. Zur Vermeidung dieses sogenannten Pile-ups verwendet man einen pulshöhenempfindlichen Amplituden-zu-Digital Wandler (Caen V1785, im Folgenden ADC) in Kombination mit einem spektroskopischen Verstärker (Ortec 671). In letzterem wird das Ausgangssignal des H19-Vorverstärkers differenziert und anschließend mehrfach integriert, sodass sich ein annähernd gaußförmiges Signal ergibt, dessen Höhe dann durch den ADC bestimmt werden kann. Die Länge des so verstärkten Signals beträgt dann nur noch 1-3  $\mu\text{s}$ , was die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von Pile-up drastisch reduziert. Jedoch ist selbst mit Signalen dieser Länge keine Zeitbestimmung mit ns-Genauigkeit möglich. Der schnelle Signalzweig verwendet daher einen Verstärker (Ortec 579), dessen schnelle Anstiegszeiten zuverlässige Zeitinformationen ermöglichen und mit dem ein Trigger der Datenaufnahme generiert werden kann, der den Anforderungen genügt.

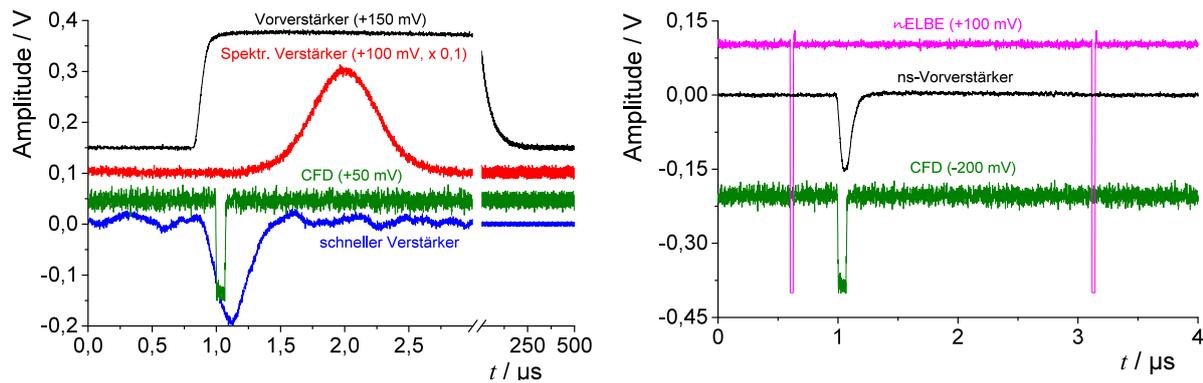
Das Zeitfenster, in welchem der ADC das Maximum eines Signals gefunden haben muss, startet 4  $\mu\text{s}$  nach dem Trigger und wird auf 6  $\mu\text{s}$  Länge gesetzt.

### Constant-Fraction Diskriminator

Der zweite Teil der Signale wird in einem am HZDR entwickelten Proportionaldiskriminator („constant-fraction-discriminator“, im Weiteren CFD) in logische Signale konvertiert.



**Abbildung 5.3.1:** Schematische Darstellung des Aufbaus der Datenaufnahme und Datenverarbeitung. Die Ausgangssignale der ladungsempfindlichen Vorverstärker werden aufgeteilt und zur Bestimmung von Zeit- und Ladungsinformation genutzt. Die Impulshöhen der H19 werden nach Signalformung im spektroskopischen Verstärker (spec. Amp.) durch einen ADC bestimmt. Die Ladungsinformationen in der Plutoniumkammer werden von einem QDC ermittelt. Das zweite Ausgangssignal der Vorverstärker wird von einem CFD in ein logisches Signal umgewandelt. Die Erzeugung eines schnellen Triggers und die Bestimmung der Flugzeit mit hoher Auflösung macht die Verwendung eines schnellen Verstärkers (fast Amp.) für die H19 im schnellen Zweig notwendig. Die logischen Signale werden dazu verwendet, um in einem FPGA-Modul den Trigger für die Datenaufnahme zu erzeugen, die Spaltraten zu bestimmen (Scaler) und die Neutronen-Flugzeiten relativ zum ELBE-Beschleuniger in einem TDC zu messen. Der Zählratenverlust infolge der Verarbeitungszeiten in QDC, ADC und der gesamten DAQ wird ebenfalls vom Scaler ermittelt.



**Abbildung 5.3.2:** Repräsentative Vorverstärkersignale (schwarz) von Spaltfragmenten der H19 (links) und PuFC (rechts) im schnellen und spektroskopischen Zweig. Das zur Impulshöhenbestimmung genutzte Ausgangssignal des spektroskopischen Verstärkers ist in Rot dargestellt, das Signal des schnellen Verstärkers in Blau. Die Flugzeit ergibt sich durch Zeitdifferenzmessung aus den CFD-Signalen (grün) und der Beschleunigerreferenz (magenta).

Dieser spezielle CFD minimiert die Abhängigkeit der Bestimmung des zeitlichen Auftretens eines Signals von seiner Pulshöhe („Walk“) über einen großen dynamischen Bereich von Eingangsamplituden. Dabei nutzt er die Nulldurchgangsmethode („Zero-Crossing“, vgl. Ref. [Gedcke und McDonald, 1967, 1968]). Die Bestimmung dieses Vorzeichenwechsels wird aber nur ausgeführt, falls das Signal den internen Schwellwertdiskriminator („Leading-Edge“-Diskriminator, LED) auslöst.

Bei Detektoren, deren Signale variable Anstiegszeiten infolge von Unterschieden in der Ladungssammelzeit (Ionisationskammern, Halbleiterdetektoren etc.) haben, kann die Zeitauflösung verbessert werden, indem die Verzögerung im CFD möglichst klein gewählt wird.

Beim sogenannten ARC-Timing (siehe Abbildung 5.3.3 und Ref. [Chase, 1968, Cho und Chase, 1972]) kann es jedoch vorkommen, dass der Nulldurchgang des bipolaren CFD-Signals vor dem Erreichen des Schwellwertes gefunden wird und somit Ereignisse verloren gehen. Insbesondere betrifft das Signale, deren Amplituden nahe der LED-Schwelle sind (in Abb. 5.3.3 unten, lila) oder deren Anstiegszeiten besonders lang sind (grün).

Der hier beschriebene CFD besitzt neben den herkömmlichen Ausgängen einen zusätzlichen, bei dem das Ausgangssignal des internen LED abgegriffen werden kann. Eine quantitative Bestimmung der Signalverluste im CFD ist somit möglich. Bei der Wahl der richtigen CFD-Verzögerung galt es also, einen Kompromiss aus akzeptablem Verlust an CFD-Signalen und bestmöglicher Zeitauflösung zu erreichen. Für die Plutoniumkammer ergab sich dieses Optimum bei **20 ns**.

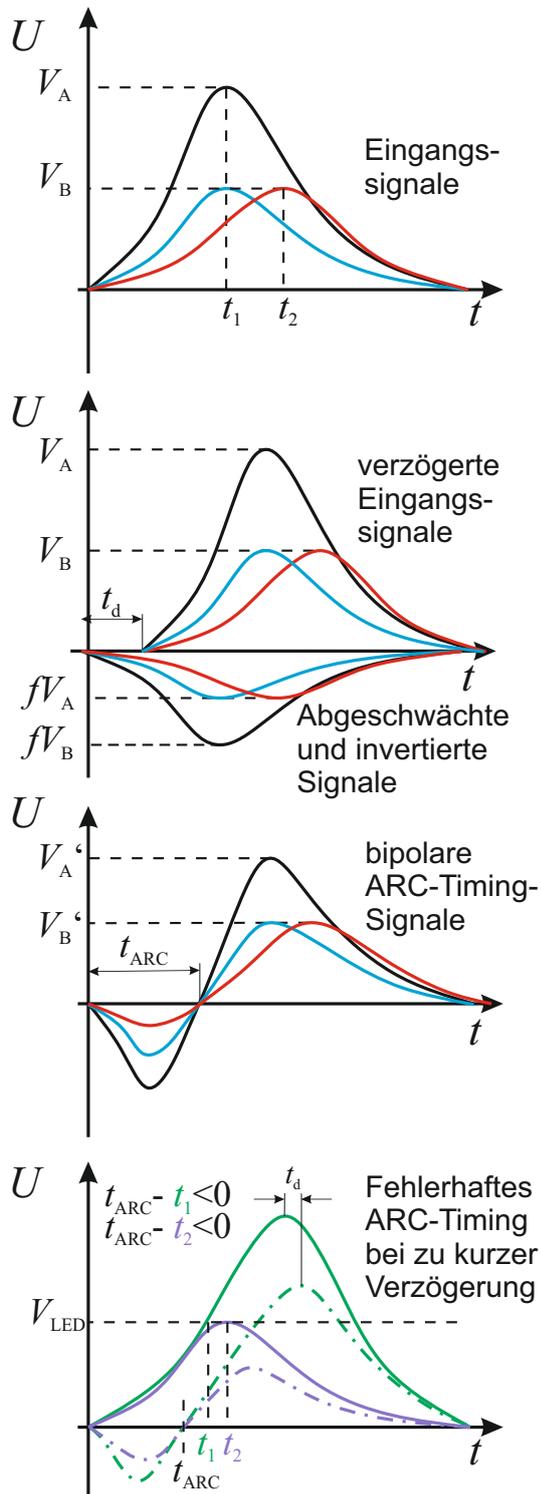


Abbildung 5.3.3: Prinzip des ARC-Timings.

TDC) des Typs CAEN V1290 verwendet. Dieser ermöglicht durch eine geschickte Verwendung parallel arbeitender Speicherbänke eine kontinuierliche Bestimmung der Signalzeiten ohne nennenswerte Verluste infolge von Verarbeitungs- und Auslesezeiten. Die Zeitin-

Das vorverstärkte Signal der H19 muss aufgrund der deutlich längeren Entladungszeit des RC-Gliedes im Canberra-Vorverstärker erst mit einem schnellen Verstärker (Ortec 579, Integrationszeit 0 ns, Differentiationszeit 20 ns) verkürzt werden. Danach stellten sich die besten Ergebnisse bei einer Verzögerung von gleichfalls **20 ns** ein.

### Trigger, Zählraten und Messzeit

Der LED-Ausgang des Diskriminators wird ebenfalls dazu benutzt, die gesamte Datenaufnahme auszulösen. Bedingung dafür ist nur, dass entweder H19 oder einer der PuFC-Kanäle ein verwertbares Eingangssignal besitzen. Für die Generierung des sogenannten Triggers wurde ein FPGA-Modul vom Typ CAEN V1495 verwendet. Aufgabe dieses Moduls war weiterhin die Erzeugung der Zeitfenster für ADC und QDC. Ein Schema der komplexen Trigger-Logik ist dem Anhang A.5 in Abbildung A.5.2 zu entnehmen. Ein weiterer FPGA dieses Typs wurde dazu benutzt, um die Detektorraten und die Messzeit zu bestimmen. Unter Berücksichtigung der Verarbeitungszeiten aller Module konnte die wirkliche Messzeit (oder auch Live-Time) der Detektoren ermittelt werden.

### Flugzeitbestimmung

Für die Bestimmung des zeitlichen Auftretens des detektierten Ereignisses wird ein Multi-Event / Multi-Hit Zeit-zu-Digital Wandler („Time-to-Digital-Converter“, im Folgenden

formationen der LED- und CFD-Signale beider Spaltkammern werden mit diesem TDC gemessen. Somit ist es möglich, den Verlust an Ereignissen durch das ARC-Timing zu kompensieren. Neben den Kanälen der Spaltkammer wurde auch die Beschleunigerreferenz in den TDC gegeben, was die Bestimmung der Flugzeit erst ermöglicht. Wird die Datenaufnahme getriggert, so werden alle aufgenommenen Ereignisse  $3\mu\text{s}$  vor bis  $1\mu\text{s}$  nach dem Triggerzeitpunkt in den Auslesespeicher des Moduls geschrieben. Dieses  $4\mu\text{s}$  lange Zeitfenster wird auch Match-Window genannt.

Die aufgenommenen Daten aller Module werden über den VME-Bus zu einem RIO 4 Power PC transportiert, verarbeitet und zum Speichern weiterverschickt. Während des gesamten Experiments wird die Datenaufnahme von diesem VME-Single-Board-Computer initialisiert, gesteuert und ausgelesen. Die Auslese der Module geschieht aller 32 Triggerereignisse<sup>8</sup>, was der Größe des internen Ereignisspeichers von ADC und QDC entspricht. Der Ereignisspeicher des TDC ist größer. Zu jedem Triggerereignis können in ihm weitere Messwerte abgelegt werden, die innerhalb des Match-Window detektiert werden. Diese besondere Eigenschaft kann genutzt werden, um zum Beispiel bei Messungen mit Sekundärelektronenvervielfachern den Anteil an Nachpulsen zu bestimmen oder um zusätzliche Spontanspaltereignisse im beschriebenen Experiment nachzuweisen. Die Speicherung der gesammelten Daten erfolgt im List-Mode-Format.

Eine vollständige Darstellung des gesamten Datenaufnahmesystems ist in Abbildung A.5.1 des Anhangs A.5 zu finden. Die verwendeten Module sind samt ihrer wesentlichen Eigenschaften ebenfalls in diesem Kapitel zusammengefasst. Weitere Details zur Datenaufnahme können in [Beyer, 2014] nachgelesen werden.

## 5.4 Datenanalyse

Die aufgenommenen List-Mode-Daten wurden mit dem an der GSI entwickelten Softwarepaket Go4 ausgewertet. Das auf ROOT [Brun und Rademakers, 1997] und Qt [Digia, 2013] basierende Programm wurde speziell für die Analyse von MBS-Daten entwickelt und stellt viele nützliche Werkzeuge für die Erzeugung und Auswertung von histogrammierten Messdaten zur Verfügung. Eine Besonderheit ist die Möglichkeit, die Analyse in einzelne Schritte zu untergliedern, die bei Bedarf ausgeführt oder deaktiviert werden können. Die Ergebnisse jedes einzelnen Schrittes können zwischengespeichert und Reanalysen somit verkürzt werden.

Die folgenden Ausführungen und Abbildungen zur Plutoniumspaltkammer beziehen sich,

---

<sup>8</sup>Üblicherweise wird diese Anzahl jedoch auf 30 reduziert, um den Modulen während der Vorbereitung zur Auslese die Möglichkeit zu geben, weitere Ereignisse aufzunehmen.

wenn nicht anders beschrieben, immer auf Deposit # 1 (DAQ-Kanal 1) der Kammer. Dieses befand sich am weitesten von der Neutronenquelle entfernt und ist willkürlich gewählt. Aussagen bezüglich dieses Kanals können ebenso auf alle anderen Kanäle übertragen werden.

## Entpackung der Rohdaten

Für das beschriebene Experiment wird die Auswertung in drei Schritten vorgenommen. Im ersten werden die aufgenommenen Rohdaten entpackt, über eine spezielle Kodierung (die sogenannte „GEO-Adresse“, siehe [Beyer, 2014, S. 32]) dem entsprechenden Modul und dessen speziellen Funktionen zugeordnet und danach für die Weiterverarbeitung aufbereitet.

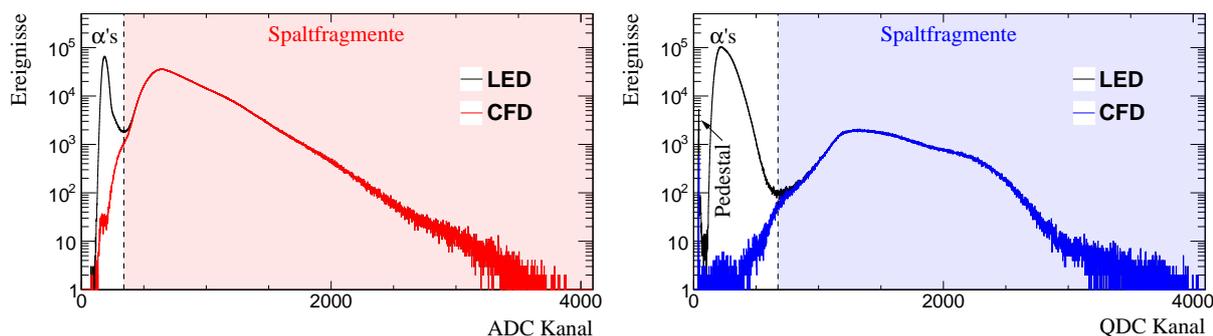
## Analyse der entpackten Daten

Der zweite Schritt bildet das Herzstück der Analyse. Hier wird überprüft, ob und wie viele Signale in den Kanälen der Spaltkammern registriert wurden. Dazu wird der LED-Ausgang des Diskriminators verwendet, da dieser alle Signale oberhalb seiner eingestellten Schwelle zuverlässig registriert. Liegt gleichzeitig auch ein Referenzsignal des Beschleunigers vor, werden die TDC- und QDC-Daten des entsprechenden Kanals ausgewertet. Die Länge des TDC-Zeitfensters („Matchwindow“,  $4\ \mu\text{s}$ ) wurde für dieses Experiment so gewählt, dass mindestens ein Referenzsignal detektiert wird.

## Impulshöhe & Ladung

Der ADC beziehungsweise QDC-Wert wird dazu verwendet, um Spalt- von Untergrundeignissen zu trennen, welche vom natürlichen  $\alpha$ -Zerfall des Targetmaterials kommen. Dabei nutzt man das größere Ionisationsvermögen von Spaltfragmenten im Vergleich zu  $\alpha$ -Teilchen aus. In Abbildung 5.4.1 sind Impulshöhen- und Ladungsverteilungen der H19 und der PuFC dargestellt.

Im linken Impulshöhenspektrum erkennt man deutlich zwei Strukturen. Während Einträge unterhalb von **Kanal 340** mehrheitlich dem  $\alpha$ -Untergrund zugeordnet werden können, sind die Ereignisse oberhalb dieser Schwelle Spaltfragmenten zuzuordnen. Im Histogramm ist dieser Bereich farblich markiert. Die Trennung beider Verteilungen ist dabei ein Gütemaß für die Qualität der verwendeten Deposits. Je dünner und homogener die Deposits, desto geringer ist der Energieverlust der Spaltfragmente in der Actinoidenschicht und die Separation somit besser. Auf die Bestimmung der optimalen Nachweisschwelle wird in Abschnitt 5.4.1 noch gesondert eingegangen.



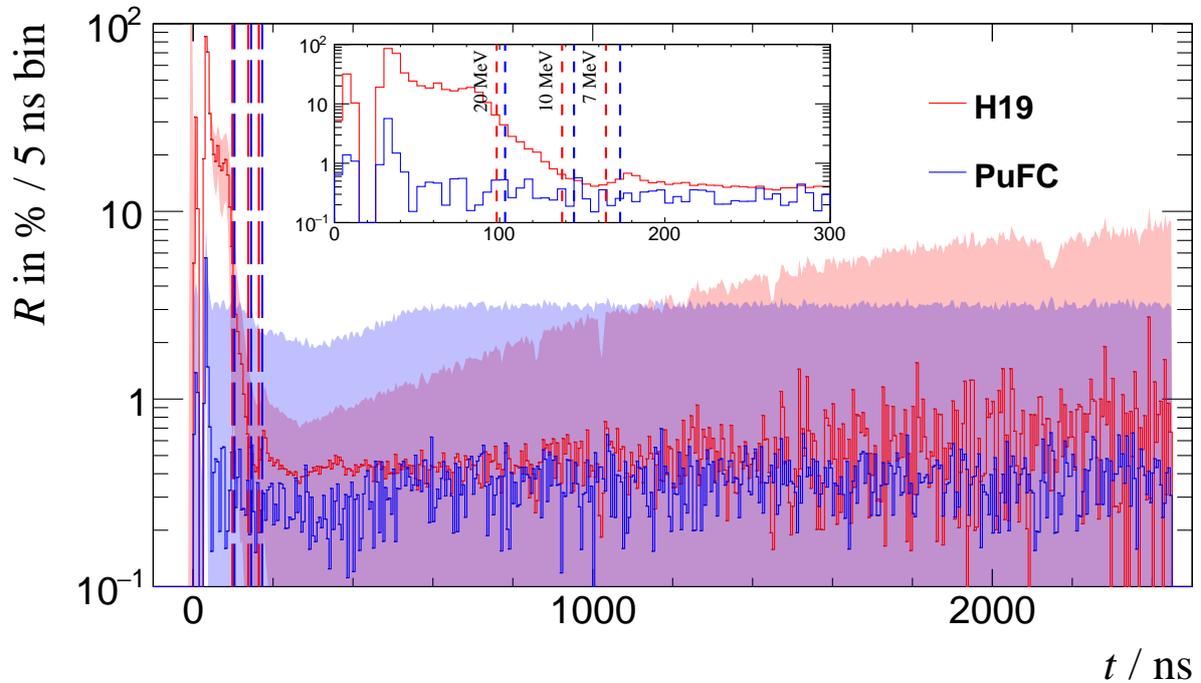
**Abbildung 5.4.1:** Impulshöhen- und Ladungsspektrum von H19 (links) und PuFC # 1 (rechts). In Schwarz sind jeweils ADC bzw. QDC-Werte dargestellt, für die es ein LED-Signal gab, in Rot und Blau die Werte, bei denen auch ein CFD-Signal vorlag. Farblich hinterlegt sind Bereiche, deren Amplituden und Ladungen Spaltfragmenten zugeordnet werden können.

Im Ladungsspektrum (rechts) findet man zusätzlich noch ein scharfes Maximum unterhalb von Kanal 100, der sogenannte „Pedestal“. Der Pedestal ist eine Besonderheit des QDCs. Erzeugt wird er dadurch, dass die Ladungsintegration von einem anderen Kanal der Pu-Spaltkammer ausgelöst wird, während der betrachtete in diesem Moment kein Ereignis registriert. In diesem Fall integriert der QDC nur den Strom, der durch eine interne Konstantstromquelle generiert wird. Diese ist notwendig, um negative Werte bei der Integration zu unterdrücken. Der Pedestal definiert somit den Nullpunkt des Ladungsspektrums.

Die Trennung von Untergrund und Spaltfragmenten (eingestellte Schwelle bei **Kanal 675**) ist trotz der höheren  $\alpha$ -Aktivität der Actinoidenschicht aufgrund der geringeren Dicke der Pu-Schichten und des größeren Plattenabstandes hier ebenso gut wie bei der H19. Die doppelhöckrige Struktur der Spaltfragmentverteilung ist auf die unterschiedliche kinetische Energie von leichten und schweren Fragmenten zurückzuführen (siehe Kapitel 4.1.5). Die Einträge am Ende des Histogramms ( $>$  Kanal 3.000) sind Ereignisse, bei denen beide Spaltfragmente nachgewiesen werden konnten. Das ist die Ausnahme, zeugt aber ebenfalls von der hohen Qualität der Pu-Deposits.

Abbildung 5.4.1 verdeutlicht zudem die Wirkungsweise des Proportionaldiskriminators im Zusammenhang mit dem bereits vorher erläuterten fehlerhaften ARC-Timing. Während Ereignisse, bei denen ein LED-Signal vorlag, in Schwarz dargestellt sind, sind Einträge mit zusätzlichem CFD-Wert farblich markiert. Man erkennt, dass der CFD nur Signale mit großen Amplituden ( $\approx$  hohen Ladungen, langen Anstiegszeiten) korrekt diskriminiert. Die Kombination aus LED-Schwelle und CFD-Verzögerung wurde aber so gewählt, dass der Verlust an den interessierenden Spaltfragmentsignalen oberhalb der gewählten Schwellen

minimal ist. Für beide Kammern ist dieser Wert integral 0,3 % und somit zu vernachlässigen. In Abhängigkeit der Flugzeit ist die Abweichung im Bereich 0,1 MeV bis 10 MeV geringer als 1 % (siehe Abbildung 5.4.2) und flugzeitunabhängig.

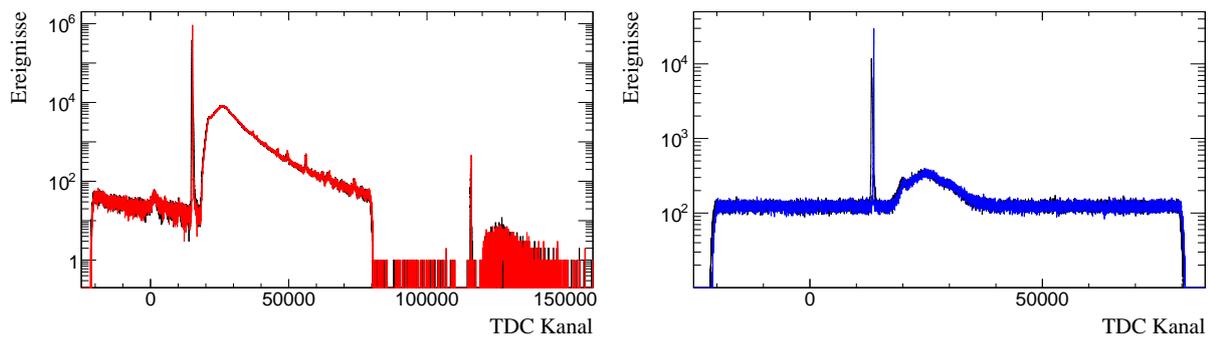


**Abbildung 5.4.2:** Relative Abweichung  $R$  von LED- zur CFD-Flugzeit für H19 (rot) und PuFC Kanal 1 (blau). Die Unsicherheiten dieses Verhältnisses aus CFD-getriggertem Flugzeitspektrum zur Kombination aus LED- und CFD-getriggertem sind in der jeweiligen Farbe transparent dargestellt. Das kleine Bild zeigt den Bereich hochenergetischer Neutronen vergrößert, da die Abweichungen dort am größten sind. Die senkrechten Linien kennzeichnen Flugzeiten, die den Neutronenenergien 20, 10 und 7 MeV entsprechen.

### Flugzeit

Die Multi-Hit-Eigenschaft des TDCs macht eine Bestimmung des zeitlich ersten Messwertes im TDC-Zeitfenster notwendig. Diese Prozedur wurde für alle vorliegenden Werte sowohl für die LED- als auch für die CFD-Signale durchgeführt. Die mittlere Anzahl von LED-TDC-Ereignissen pro Triggerereignis und Kanal war für die PuFC rund 0,6. Bei der H19 lag dieser Wert mit rund 0,8 etwas höher. Das war einerseits durch die gleichzeitige Auslese aller 10 Deposits und andererseits durch die geringere (Eigen-)Aktivität der Uransichten bedingt.

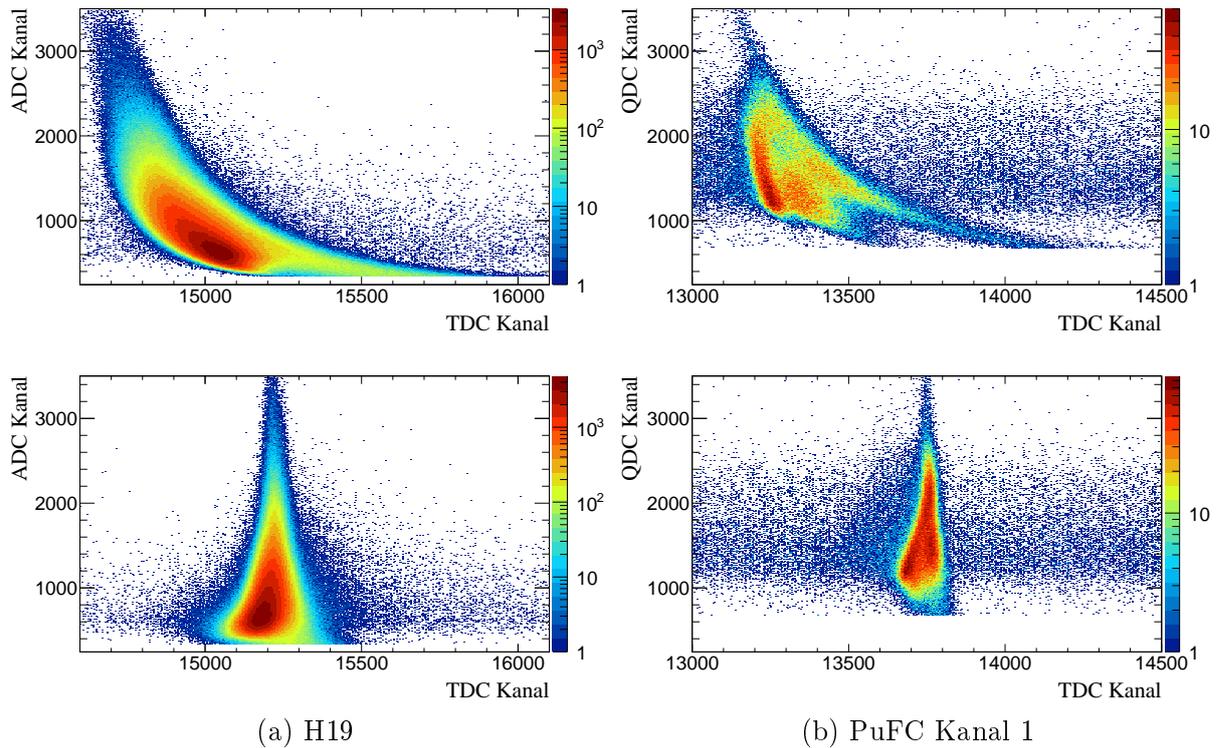
Fügt man die Zeitdifferenz aus Beschleunigerreferenz und Diskriminatorsignal in ein Histogramm ein, erhält man unkalibrierte Flugzeitspektren. Diese sind für H19 und PuFC in



**Abbildung 5.4.3:** Zeitdifferenzspektren von H19 (links) und PuFC (rechts). In Rot und Blau dargestellt sind die Spektren, deren Zeitdifferenz aus Beschleunigerreferenz und CFD-Signal gebildet wurden, in Schwarz aus Referenzsignal und LED. Die gezeigten Spektren enthalten nur Ereignisse, deren korrespondierender ADC- bzw. QDC-Wert oberhalb der Spaltfragmentschwelle liegt (vgl. Abbildung 5.4.1). 1 TDC Kanal entspricht 24,414 ps.

Abbildung 5.4.3 dargestellt. Dort erkennt man in beiden Fällen einen scharfen Peak gefolgt von einer breiten Verteilung. Der sogenannte „Bremsstrahlungspeak“ oder „Gammaflash“ wird von Bremsstrahlungsphotonen erzeugt, die ebenfalls Spaltungen hervorrufen können (siehe [Bohr und Wheeler, 1939]). Die Signatur eines Photospaltereignisses ist abgesehen vom Unterschied im zeitlichen Auftreten identisch mit einem Ereignis aus der neutronen-induzierten Spaltung. Die Erklärung der unterschiedlichen Formen beider Verteilungen im Flugzeitspektrum ist also durch die unterschiedliche Teilchenart gegeben. Während sich Photonen immer mit Lichtgeschwindigkeit bewegen, verändert sich die Flugzeit von Neutronen mit ihrer kinetischen Energie. Da abgesehen von minimalen Laufzeitunterschieden durch die Größe des Produktionstargets alle Photonen zur gleichen Zeit die jeweilige Actinoidenschicht erreichen, ist die Halbwertsbreite (im Folgenden auch FWHM) des Gammaflashes ein Maß für die intrinsische Zeitauflösung des Detektors und der verwendeten Elektronik. Für die H19 ergab sich ein Auflösungsvermögen von **2,3 ns** und für die PuFC ein Wert von **1,7 ns**. Die Zeitauflösung für LED-Ereignisse ist einen Faktor 2 (H19) bis 3 (PuFC) schlechter, was auf den oben beschriebenen „Walk“-Effekt zurückzuführen ist. Prinzipiell ist es mithilfe des zugehörigen ADC- bzw. QDC-Wertes jedoch möglich, diesen Effekt zu korrigieren, wenn eine eindeutige Beziehung zwischen Pulshöhe beziehungsweise Ladung und Flugzeit besteht. Das ist für Detektoren mit variablen Anstiegszeiten nicht immer gegeben, wie in Abbildung 5.4.4 gezeigt wird.

Dargestellt ist hier der Zusammenhang zwischen dem Zeitsignal des Diskriminators und der entsprechenden Impulshöhe desselben Signals in der H19 beziehungsweise der induzierten Ladung in Kanal 1 der PuFC. Um eine gemeinsame Zeitreferenz zu haben, wurden hier



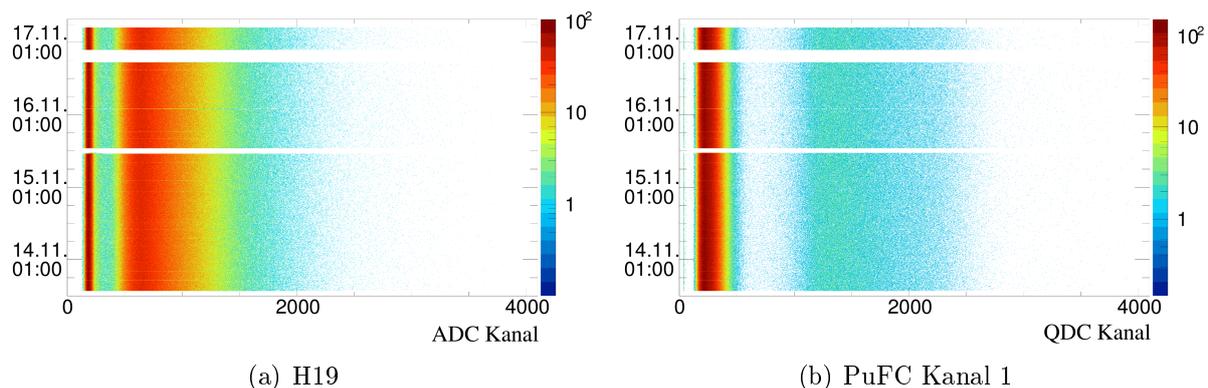
**Abbildung 5.4.4:** „Walk“-Effekt im Diskriminator für beide Spaltkammern. Oben: LED-getriggerte Ereignisse von Photospaltungen in der H19 (links) und PuFC (rechts). Unten: Ereignisse des Proportionaldiskriminators in Abhängigkeit der Impulshöhe beziehungsweise der detektierten Ladung. Der „Walk“ im CFD ist hier erwartungsgemäß deutlich geringer. Die Doppelhöckerstruktur rechts ist ein Resultat der kurzen CFD-Verzögerung des ARC-Timings [Drexler, 1998]. Eine Korrektur ist aufgrund der fehlenden Eineindeutigkeit in der Relation beider Messgrößen schwierig, kann im Hinblick auf die Größe des Effekts im CFD aber vernachlässigt werden. Die Kanalbreite beträgt 24,414 ps.

nur Photospalteneignisse betrachtet. Die zwei oberen Grafiken zeigen den Walk des LED. Für die PuFC im Bild rechts sind mehrere Strukturen zu sehen, die eine nachträgliche Korrektur dieses Effekts verhindern. Auch die Korrektur des Walks des LED der H19 wird durch die große Breite der im Bild links gezeigten Verteilung erschwert. Die unteren Bilder zeigen Photospalteneignisse des CFD. Der Walk-Effekt ist dort entsprechend kleiner. Die Doppelhöckerstruktur in der Verteilung der PuFC verhindert eine eindeutige Zuordnung von Ladung und Zeit und ist ein Resultat des fehlerhaften ARC-Timings.

### Langzeitstabilität

Ein wichtiges Kriterium für eine korrekte Bestimmung der Flugzeit der nachgewiesenen Teilchen ist auch die Stabilität in der Bestimmung des zeitlichen Auftretens der Detek-

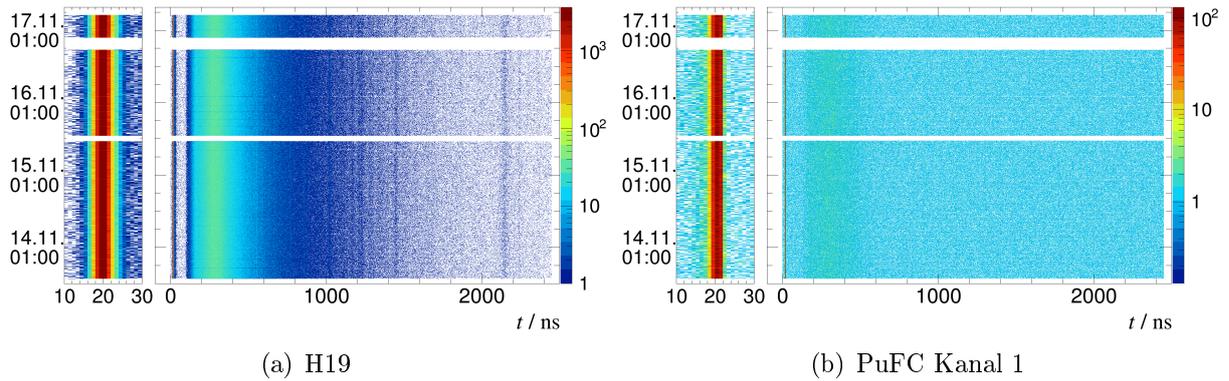
torsignale. Durch Temperaturschwankungen kann sich die eingestellte Schwelle im Diskriminator verschieben und so Einfluss auf die Zeitbestimmung haben. Detektoren und Messelektronik befinden sich in klimatisierten Räumen, sodass dieser Effekt nur minimalen Einfluss hat. In Abbildung 5.4.5 sind Impulshöhen bzw. Ladungen in 5-Minuten-Intervallen über das gesamte Experiment dargestellt.



**Abbildung 5.4.5:** Langzeitverhalten der Ladungs- beziehungsweise Impulshöhenbestimmung für 5-min-Abstände während des gesamten Experiments. Die Unterbrechungen in der Zeitachse sind durch kurzzeitige Strahlausfälle und Umbaumaßnahmen bedingt.

Die Stabilität der Ladungsbestimmung lässt sich an der Lage der Maxima von Spaltfragment- und  $\alpha$ -Verteilung gut überprüfen. Die äußere linke Kante des  $\alpha$ -Peaks ist durch die eingestellte Diskriminatorschwelle gegeben, deren zeitliche Konstanz ebenfalls verifiziert werden kann. Eine driftende Diskriminatorschwelle kann die Zählrate des betreffenden Kanals signifikant beeinflussen. Das  $\alpha$ -Spektrum fällt in der Nähe der Schwelle stark ab, sodass durch eine geringe Änderung der Schwelle Zählratenunterschiede von wenigen Ereignissen pro Sekunde bis zu mehreren 10.000 pro Kanal möglich sind. Verschiebt sich die Diskriminatorschwelle während des Experiments zu niedrigeren Spannungen, so kann das enorme Zählratenverluste der gesamten Datenaufnahme verursachen. Eine solche Verschiebung konnte während des gesamten Experiments in keinem der 9 Kanäle beobachtet werden.

Variationen bei der Bestimmung der korrekten Flugzeit können anhand der Lage der Photospaltungen im Flugzeitspektrum überprüft werden. Abbildung 5.4.6 zeigt auch hier eindrucksvoll die exzellente Stabilität des Referenzsignals und der verwendeten Elektronik. Der Bereich der Photospaltungen ist in beiden Bildern jeweils ganz links vergrößert dargestellt. Wie man deutlich sehen kann, war sowohl für die H19 als auch für die PuFC die Flugzeitbestimmung über den gesamten Messzeitraum innerhalb der Zeitauflösung stabil.



**Abbildung 5.4.6:** Stabilität der Flugzeitbestimmung während des gesamten Experiments jeweils über 5 min integriert. Die Lage von Photospaltereignissen im Flugzeithistogramm der H19 (links) und der PuFC (rechts) zeigt eindrucksvoll die Stabilität des Messaufbaus.

## Untergrund

Ein weiterer Unterschied zwischen dem Zeitdifferenzspektrum der H19 und der Plutoniumspaltkammer ist der Anteil des aufgenommenen Untergrundes. Während sich der Untergrund der H19 im Wesentlichen aus zurückgestreuten Neutronen, oft mit nur epithermischen Energien ergibt, ist die hauptsächliche Quelle von Untergrund im Plutoniumspektrum die Spontanspaltung. Für stark abgebremste Neutronen geht die zeitliche Korrelation zum Strahl fast vollständig verloren und Ereignisse aus der natürlichen Radioaktivität sind prinzipiell zeitlich unkorreliert. Die PuFC ist für rauminduzierten Untergrund fast vollständig insensitive, da die Spaltbarriere von  $^{242}\text{Pu}$  mit  $\approx 0,7\text{ MeV}$  sehr hoch ist und die zurückgestreuten Neutronen hauptsächlich kinetische Energien besitzen, die geringer sind (siehe Abb. 5.4.9). Der Untergrund in beiden Kammern kann somit als **zeitlich konstant** angenommen werden. Weitere zeitabhängige Beiträge zum Untergrund, vor allem aus (n,p)- und (n, $\alpha$ )-Reaktionen, können aufgrund ihres geringen Wirkungsquerschnitts vernachlässigt werden.

Das H19-Spektrum weist für Zeitdifferenzen größer als 115.000 Kanäle noch Ereignisse auf, deren eigentliches Referenzsignal sich vor dem Zeitfenster des TDC befindet. Durch Subtraktion einer Beschleunigerperiode kann das jedoch einfach korrigiert werden. Gleiches gilt für Ereignisse, die sich zeitlich vor dem Gammaflash befinden. Diese werden von besonders langsamen Neutronen verursacht, deren korrekte Referenzsignale erst nach dem Schließen des TDC-Fensters eintreffen. Bei diesen Ereignissen muss eine Beschleunigerperiode hinzuaddiert werden, was aber erst im darauf folgenden Analyse-Schritt notwendig wird.

Am Ende dieses Teils der Analyse werden die weiterhin benötigten Messdaten (Impulshöhe bzw. -ladung und Zeitdifferenz) an den nächsten Schritt übergeben.

## Flugzeitspektren und Kalibrierung

Im dritten und letzten Schritt werden die Zeitdifferenzhistogramme kalibriert und in Flugzeitspektren umgewandelt. Da das Beschleunigersignal nicht von den auf das Neutronenproduktionstarget auftreffenden Elektronen generiert wird, sondern direkt von den Hochfrequenzmodulen der Beschleunigerkavitäten stammt, existiert eine vorerst unbekannte zeitliche Diskrepanz zwischen dem Zeitpunkt der Neutronenproduktion und der Erzeugung des Beschleunigersignals. Mithilfe der Photospaltereignisse kann diese Verschiebung jedoch bestimmt werden, da die Flugstrecke und die Geschwindigkeit der Bremsstrahlungspotonen bekannt sind. Wenn  $k_\gamma$  die Lage des Bremsstrahlungspeaks und  $k$  ein beliebiger Kanal des Zeitdifferenzhistogramms ist, dann ergibt sich die Flugzeit  $t$  von Photonen und Neutronen über:

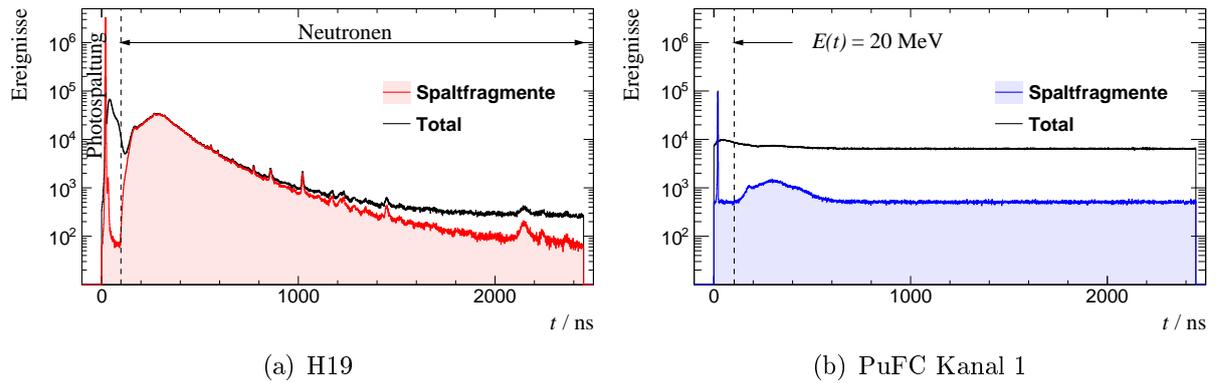
$$t = f \cdot (k - k_\gamma) + \frac{L}{c}, \quad (5.4.1)$$

wobei  $L$  die zurückgelegte Flugstrecke (vergleiche mit Tabelle 5.2.1),  $c$  die Vakuumlichtgeschwindigkeit und  $f = 24,414 \text{ ps/Kanal}$  die TDC-Dispersion ist. Wie bereits im zweiten Analyse-Schritt erwähnt wird bei der ereignisweisen Umrechnung zusätzlich noch darauf geachtet, ob die aktuellen Ereignisse zeitlich vor dem Bremsstrahlungspeak oder außerhalb des TDC-Zeitfensters liegen. In entsprechenden Fällen wird dann noch eine Beschleunigerperiode addiert oder abgezogen. Die Flugzeitspektren enthalten hier nur Ereignisse, deren Signalhöhe/-ladung größer als die Nachweisschwelle für Spaltfragmente ist. Das bedeutet, dass ein korrelierter Untergrund aus  $\alpha$ -induzierten Signalen so gut wie nicht vorhanden ist. Die fertig kalibrierten Flugzeithistogramme mit (in Rot bzw. Blau) und ohne (in Schwarz) Beschränkung auf Spaltereignisse sind in Abbildung 5.4.7 dargestellt.

Das Flugzeitspektrum der H19 weist bei genauerer Betrachtung resonante Strukturen auf, die im Wesentlichen auf angeregte Zustände im Blei-Compoundkern bei der Erzeugung der Photoneutronen zurückgehen. Bei 40, 89, 179, 254, 314 und 605 keV gibt es starke Einfangresonanzen im  $^{207}\text{Pb}$ , die in der Umkehrreaktion zu starker Neutronenemission führen. Aber auch Bereiche mit vermindertem Neutronenfluss sind im Spektrum enthalten, deren Erklärung Neutronenabsorption im flüssigen Blei direkt nach deren Erzeugung ist. Die Strukturen durch resonante Neutronenemission und -absorption können ebenfalls zur Kalibrierung der Flugzeit verwendet werden.

Deutlich erkennbar ist die stärkere Reduzierung des  $\alpha$ -Untergrundes für die Plutoniumtargets, was allerdings auf die höhere Gesamtaktivität der Deposits zurückzuführen ist. Der immer noch bedeutende Anteil an Spontanspaltereignissen kann mit dieser Methode jedoch nicht verkleinert werden.

Die Spontanspaltung ist in diesem Fall jedoch hilfreich statt störend. Mit ihr kann die



**Abbildung 5.4.7:** Flugzeitspektren der Spaltkammern. Die in Schwarz dargestellten Histogramme zeigen die Flugzeit ohne jegliche Selektion auf Impulshöhen oder -ladungen. Bei den farblich hervorgehobenen Spektren wurden dagegen nur Messwerte berücksichtigt, die von Spaltfragmenten stammen. Die gestrichelte Linie kennzeichnet den Anfang der Neutronenverteilung und wurde für die beschriebene Analyse auf 20 MeV gelegt. Der scharfe Peak am linken Rand wird Photospalttereignissen zugeordnet.

unbekannte Anzahl der Targetatome bestimmt werden, die zur Berechnung des neutroneninduzierten Spaltquerschnitts benötigt wird. Mit der genauen Bestimmung der Spontanspaltrate befasst sich der folgende Abschnitt.

### 5.4.1 Bestimmung der Spontanspaltrate

Die Anzahl der in den Actinoidenschichten enthaltenen  $^{242}\text{Pu}$ -Atome  $N_{\text{T}}$  kann über das Zerfallsgesetz

$$N_{\text{T}} = \frac{\dot{N}_{(\text{SF})}}{\lambda\gamma} \quad (5.4.2)$$

bestimmt werden. Benötigt werden hierfür nur die Spontanspaltrate  $\dot{N}_{(\text{SF})}$ , die  $^{242}\text{Pu}$ -Zerfallskonstante  $\lambda$  und deren Verzweigungsverhältnis für Spontanspaltung  $\gamma$ . Das Produkt  $\lambda\gamma = \frac{\ln 2}{T_{1/2,(\text{SF})}}$  ergibt sich hierbei aus dem gewichteten Mittel von  $T_{1/2,(\text{SF})} = (6,76 \pm 0,09) \cdot 10^{10} \text{ a}$  aus Abbildung 5.1.1.

Die Bestimmung der Plutoniumspontanspaltrate wurde jeweils im Anschluss zu den drei am Anfang von Kapitel 5 erwähnten Messkampagnen durchgeführt. Prinzipiell kann die Spontanspaltrate auch aus den Messungen mit Neutronenstrahl extrahiert werden, jedoch ist sie dort nicht vom neutroneninduzierten Raumuntergrund zu unterscheiden. Bis auf den ersten Teil der Messung vom Mai 2014 an der PTB Braunschweig wurde daher die Spontanspaltrate immer ohne eingeschalteten Neutronenstrahl gemessen. Im Fall der Braunschweiger Messung stand die Ionisationskammer aber in 5 m Entfernung und unter einem

Winkel von  $65^\circ$  zur Neutronenquelle, sodass der Einfluss direkter Neutronen auf das Messergebnis vernachlässigt werden kann. Auch an den Wänden zurückgestreute Neutronen können in der Neutronenhalle der PTB vernachlässigt werden, da der Abstand zu allen Wänden ebenfalls größer als 5 m war.

Um den Einfluss des Beschleunigerreferenzsignals auf die Verarbeitungszeiten der Datenaufnahmeelektronik zu simulieren (bei PTB immerhin 2,5 MHz), wurde das Referenzsignal mit gleicher Frequenz ersatzweise von einem Pulsgenerator erzeugt. Bei der Auswertung ist dieses Signal jedoch nicht von Bedeutung, da keine Flugzeit berechnet werden muss.

Zur Bestimmung der Spontanspaltrate reicht es, die Anzahl aller aufgenommenen Spaltfragmente und die exakte Messzeit zu bestimmen. Ohne weitere Bedingung auf die aufgenommenen Ereignisse genügt die Auswertung der TDC- oder QDC-Rohdaten. Es muss jedoch sichergestellt sein, dass es sich bei dem aufgenommenen Ereignis auch um ein Spaltfragment handelt. Im Ladungsspektrum kann solch eine Unterscheidung getroffen werden. Setzt man die Nachweisschwelle zum Beispiel in das lokale Minimum zwischen  $\alpha$ -Untergrund und Spaltfragmentverteilung, vernachlässigt man nur einen geringen Anteil an Spaltfragmenten mit sehr kleinen induzierten Ladungen (vgl. Kapitel 4.1.5). Wird jedoch bei der Auswertung der neutroneninduzierten Spaltraten (siehe Kapitel 5.4.2) derselbe Schwellwert verwendet, kompensiert sich dieser Effekt und der Spaltquerschnitt wird unabhängig von der Nachweiseffizienz für Spaltfragmente.

Zur genauen Bestimmung des lokalen Minimums wurde ein Polynom 4. Grades an die Messwerte im Bereich zwischen  $\alpha$ -Untergrund und Spaltfragmentverteilung angepasst (siehe Abbildung 5.4.8). Von diesem konnte im nächsten Schritt die genaue Lage des Minimums berechnet und einem entsprechenden Kanal des Ladungsspektrums zugeordnet werden. Danach wurden alle Ereignisse von dort beginnend bis zum Ende des Spektrums aufsummiert und abschließend durch Ereignisse ergänzt, die den dynamischen Bereich des QDCs überschritten haben. Im Verhältnis zur Messzeit (Live-Time) ergab das eine Spontanspaltrate für jedes Deposit der Spaltkammer. Die Ergebnisse der unterschiedlichen Messungen wurden mit ihrer statistischen Unsicherheit gewichtet und zu einer repräsentativen Spontanspaltrate zusammengefasst.

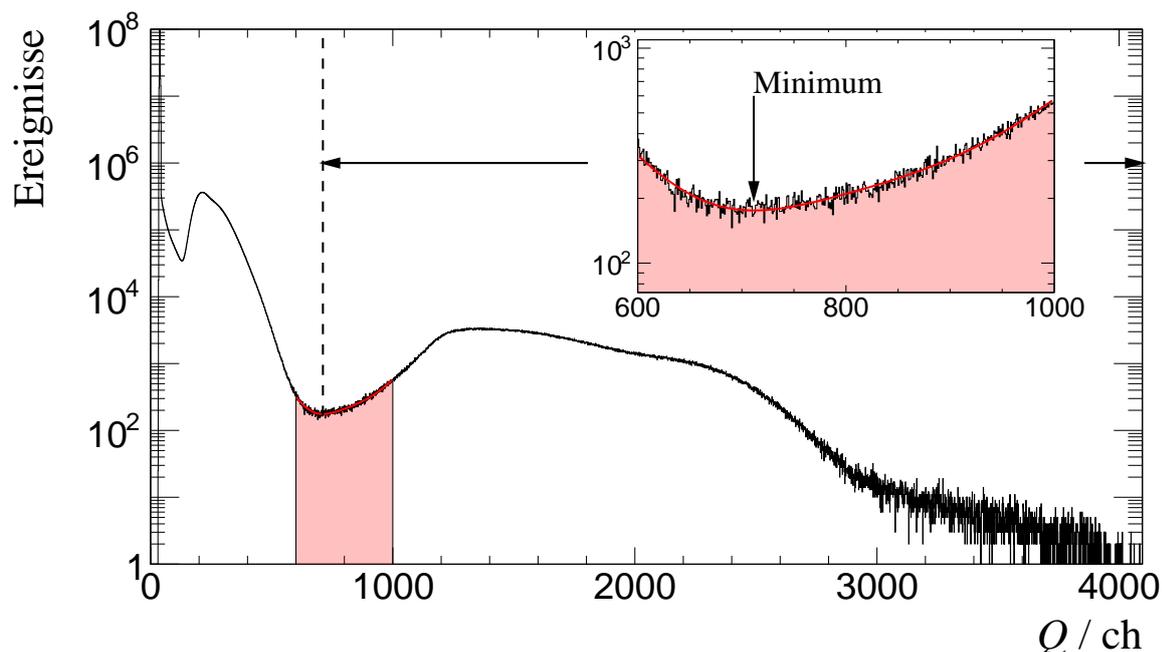
Die Ergebnisse der Einzelmessungen samt gewichtetem Mittelwert sind in Tabelle 5.4.1 dargestellt. Aus dem gewichteten Mittel können dann unter Berücksichtigung der simulierten Nachweiseffizienz für Spaltfragmente (vgl. Kapitel 4.1.5) die Anzahl an Plutoniumkernen, die abgeschiedenen Massen und Flächenbelegungen berechnet werden. Diese Ergebnisse sind in Tabelle 5.4.2 zusammengefasst.

**Tabelle 5.4.1:**  $^{242}\text{Pu}$ -Spontanspaltraten (in Zerfällen pro Sekunde) der durchgeführten Messungen und gewichtetes Mittel aus allen drei Werten. Die PTB-Messung vom Mai 2014 untergliedert sich in zwei Teilmessungen. Die erste erfolgte parasitär zur Effizienzkalibrierung der UFC bei aktivem Neutronenstrahl. Die PuFC befand sich dabei jedoch weit entfernt von der Neutronenquelle. Da der Vorverstärker von Deposit 9 während dieser Messung defekt war, konnte für diesen Kanal keine Rate ermittelt werden. Die zweite Messung wurde mit deaktiviertem Neutronenstrahl durchgeführt.

Deposit	PTB		<i>n</i> ELBE		gewichtetes Mittel
	mit RF	mit Pulser	06.2014	11.2014	
1	4,325(4)	4,331(3)	4,3275(18)	4,3106(25)	4,3234(13)
3	3,869(3)	3,904(3)	3,8991(17)	3,8920(24)	3,8945(12)
4	3,489(3)	3,4936(29)	3,4868(16)	3,4781(22)	3,4859(11)
5	3,366(3)	3,3658(28)	3,3583(16)	3,3610(22)	3,3611(11)
6	3,536(3)	3,5445(29)	3,5389(17)	3,5363(23)	3,5388(11)
7	3,528(3)	3,5358(29)	3,5293(17)	3,5257(23)	3,5293(11)
8	3,297(3)	3,2990(28)	3,2918(16)	3,2965(22)	3,2948(11)
9	-	4,265(3)	4,2490(18)	4,2455(25)	4,2508(13)
Summe:	25,411(9)	29,738(8)	29,684(5)	29,646(7)	<b>29,679(3)</b>

**Tabelle 5.4.2:** Aus den gemessenen Spaltraten resultierende  $^{242}\text{Pu}$ -Kerne  $N$ , abgeschiedene Gesamtmassen  $m$  an  $^{242}\text{Pu}$  und Flächenbelegungen  $m_A$  der *n*ELBE-Deposits. Die letzte Zeile beinhaltet die Summen über alle Deposits mit Ausnahme der Flächenbelegungen in der letzten Spalte. Dort wurde das arithmetische Mittel angegeben, um die mittlere Dicke der Targets zu erhalten. Die Anzahl der Probenatome wurde mit der intrinsischen Nachweiseffizienz aus Tabelle 4.1.3 korrigiert.

Deposit	PuFC Kanal	$N/10^{19}$	$m$ / mg	$m_A$ / $\mu\text{g}/\text{cm}^2$
1	1	1,350(23)	5,42(9)	126(4)
3	2	1,216(21)	4,89(8)	114(4)
4	3	1,088(18)	4,37(7)	102(3)
5	4	1,049(18)	4,22(7)	98(3)
6	5	1,105(19)	4,44(7)	103(3)
7	6	1,102(19)	4,43(7)	103(3)
8	7	1,029(17)	4,13(7)	96(3)
9	8	1,327(22)	5,33(9)	124(4)
<b>Summe / Mittelwert:</b>		<b>9,26(6)</b>	<b>37,24(22)</b>	<b>108(4)</b>



**Abbildung 5.4.8:** QDC-Rohspektrum der Plutoniumspaltkammer. Zur Bestimmung des Minimums zwischen  $\alpha$ -Untergrund und Spaltfragmentverteilung wurde ein Polynom (rote Kurve) an die Messwerte angepasst. Die rot markierte Fläche kennzeichnet den Bereich, in dem die Anpassung durchgeführt wurde. Im Einsatz wurde dieser noch einmal vergrößert dargestellt und die Lage des Minimums markiert. Die horizontalen Pfeile markieren das Intervall, welches zur Integration verwendet wurde.

### 5.4.2 Bestimmung des neutroneninduzierten Spaltquerschnitts von $^{242}\text{Pu}$

Um den energieabhängigen Spaltquerschnitt zu bestimmen, ist es notwendig, die flugzeitgebinnten Histogramme in spektrale Verteilungen umzuwandeln. Erst durch diese Umrechnung ist es möglich, die Spektren der einzelnen Pu-Spaltkammerkanäle zusammenzufassen. Flugzeitabhängig lassen sie sich nicht kombinieren, da sie von der Flugstrecke zwischen Neutronenquelle und dem jeweiligen Deposit abhängen. Bei dieser Transformation ist es wichtig, den im Flugzeitspektrum enthaltenen Untergrund statistisch korrekt zu berücksichtigen.

Wie in Kapitel 5.4 bereits dargelegt ist der Untergrund in beiden Kammern zeitlich unkorreliert und im Flugzeitspektrum somit konstant. Bestimmt wird er durch Anpassung einer konstanten Funktion innerhalb zweier Flugzeitintervalle, von denen angenommen werden kann, dass keine primären Neutronen des  $n\text{ELBE}$ -Strahls beitragen. Der erste Bereich befindet sich zwischen den Photospaltereignissen und dem Beginn der Neutronenverteilung ( $E(t) = 20 \text{ MeV}$ ). Diese obere Grenze für die kinetische Energie der Neutronen wurde

unter Berücksichtigung des  $n$ ELBE-Neutronenspektrums (siehe Abbildung 3.0.4) gewählt. Das zweite Intervall umfasst den Bereich langsamer Neutronen. Da das Uran-235 der H19 thermisch spaltbar ist, fällt dieser kleiner aus als beim Plutonium-242 und umfasst nur die letzten 50 ns (2.400 ns bis 2.450 ns) des Spektrums. Für die PuFC wurde die untere Flugzeitgrenze dieses Bereiches so gewählt, dass die entsprechende Neutronenenergie ( $\approx 270$  keV) kleiner als die Spaltbarriere ( $\approx 550$  keV) ist. Die Anpassung erfolgt dort im Bereich von 850 ns bis 2.450 ns.

Da das Flugzeitspektrum poissonverteilte Messgrößen beinhaltet, muss zur korrekten Beschreibung der Daten eine Log-Likelihood-Methode verwendet werden. Die Ergebnisse dieser Anpassung entsprechen aber im Spezialfall einer konstanten Funktion dem arithmetischen Mittel  $\hat{\mu} = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n x_j$  mit seiner Unsicherheit (Standardabweichung)  $\sigma_{\hat{\mu}} = \sqrt{\frac{\hat{\mu}}{n}}$  [Blobel und Lohrmann, 2012, S. 135f.].

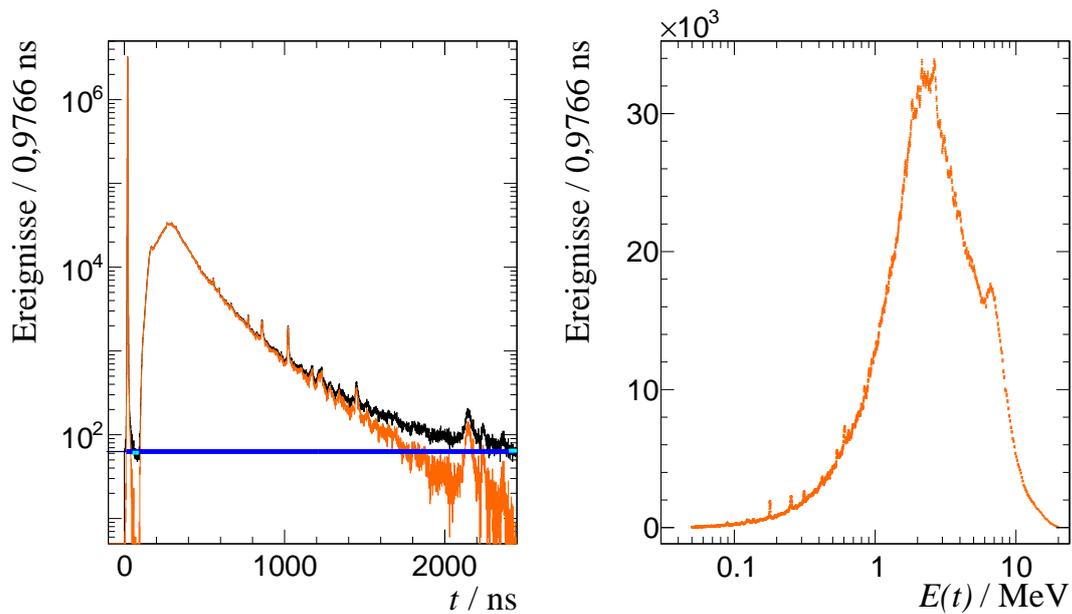
Die untergrundbereinigten Flugzeitspektren sind in Abbildung 5.4.9 für die H19 und in Abbildung 5.4.10 für die PuFC jeweils links dargestellt. Die oben beschriebenen Intervalle sind dort als cyanfarbene Linie eingezeichnet. Es sind lokale Anpassungen der Konstanten, beschränkt auf das jeweilige Intervall. Die globale Approximation über beide Bereiche ist in Blau (H19) und in Rot (PuFC) eingezeichnet.

Für die Umrechnung vom Flugzeit- zum Energiebinning bietet sich eine Monte-Carlo-Methode (im Folgenden MC-Methode) an. Dafür müssen zuerst die Binngrenzen des Flugzeithistogramms über

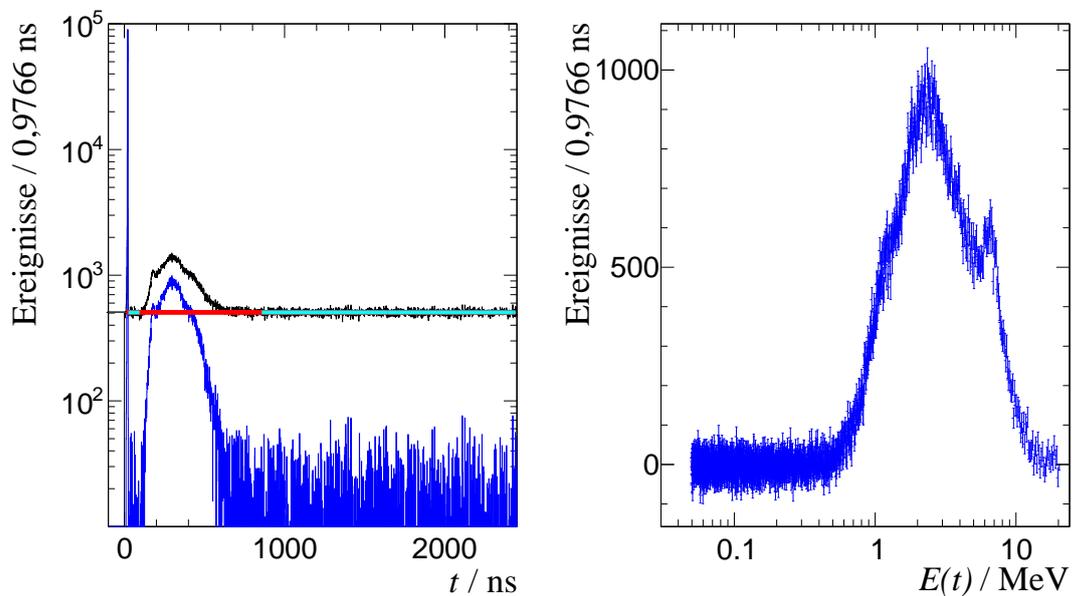
$$E_j^i(t_j) = m_n c^2 \left( \frac{1}{\sqrt{1 - \left(\frac{L_i}{ct_j}\right)^2}} - 1 \right) \quad (5.4.3)$$

in Intervalle der kinetischen Energie  $E_j^i$  umgerechnet werden. Hierbei steht  $m_n$  für die Masse eines Neutrons,  $L_i$  für die Neutronenflugstrecke zum jeweiligen Deposit  $i$ ,  $t_j$  für die untere Grenze des  $j$ -ten Flugzeitbins und  $c$  für die Vakuumlichtgeschwindigkeit.

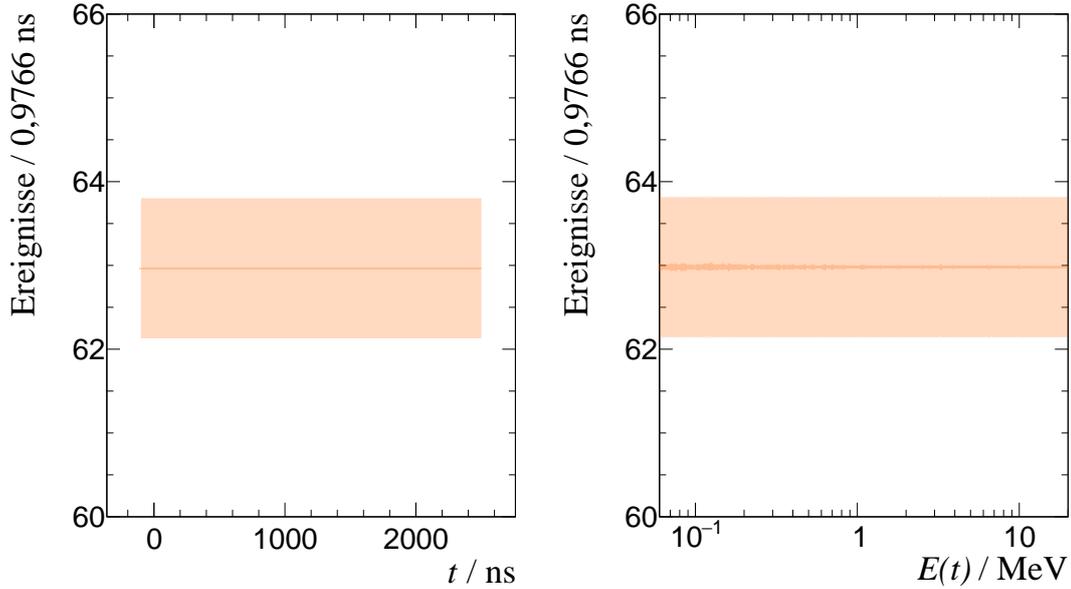
Um die Spektren später summieren zu können, muss allen Kanälen das gleiche Energiebinning zugrunde liegen. Da dieses jedoch flugstreckenabhängig ist, muss ein universeller Bezugspunkt festgelegt werden. Dieser ist willkürlich wählbar. Da die H19 die Funktion einer Referenzkammer übernimmt, wird ihr Energiebinning (bezogen auf die Flugstrecke zum Mittelpunkt der Kammer,  $L_i \stackrel{!}{=} 5.981$  mm,  $\forall i$ ) als universell gewählt und auf alle Plutoniumdeposits angewendet. Es sollte an dieser Stelle darauf hingewiesen werden, dass es sich bei der beschriebenen Prozedur nur um ein Umbinnen handelt und um keine Transformation im eigentlichen Sinne! Bei solch einer Achsentransformation muss der Jacobian berücksichtigt werden, der sich bei der weiteren Berechnung jedoch eliminiert, da Energiespektren von H19 und PuFC durcheinander geteilt werden.



**Abbildung 5.4.9:** Links: Flugzeithistogramm der H19 vor (schwarz) und nach Abzug des Untergrundes (orange). Die blaue Linie ist das Resultat der Anpassung einer konstanten Funktion zur Bestimmung des Untergrundes. Rechts dargestellt ist dasselbe Spektrum mit aus der Flugzeit errechneter Energie, nachdem der ebenfalls umgebintete Untergrund subtrahiert wurde.



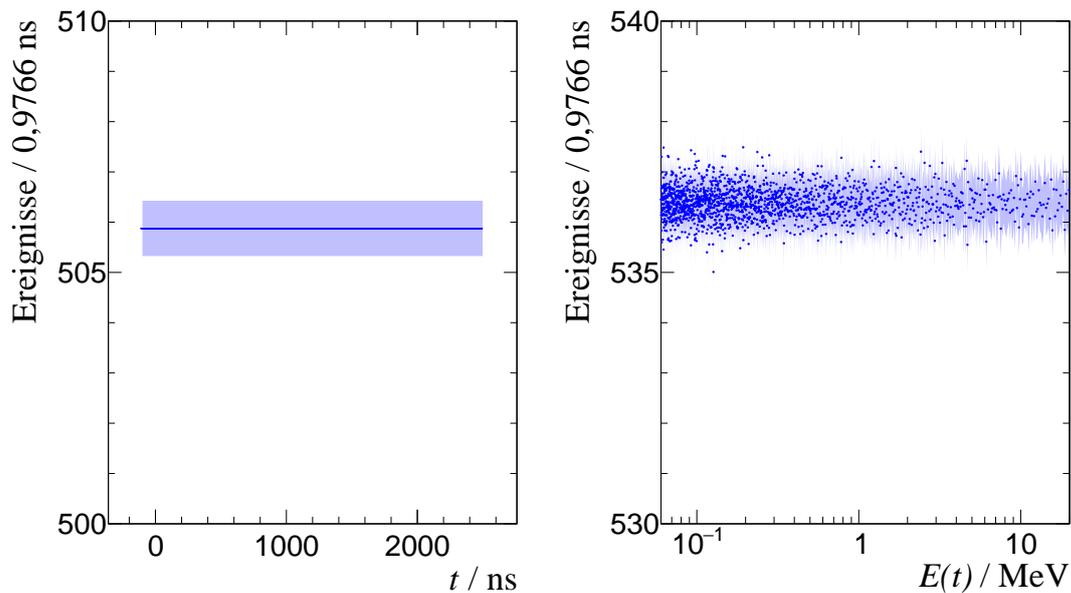
**Abbildung 5.4.10:** Darstellung der Flugzeitspektren von Kanal 1 der PuFC analog zu Abbildung 5.4.9. Deutlich zu sehen ist der Untergrund durch den spontanen Zerfall von  $^{242}\text{Pu}$ .



**Abbildung 5.4.11:** Raumuntergrund detektiert in der H19-Spaltkammer vor (links) und nach dem Umbinnen (rechts). Die Unsicherheiten in der Bestimmung des Untergrundes sind farblich transparent dargestellt. Die kleinen Fluktuationen im rechten Spektrum sind eine Folge der Monte-Carlo-Methode.

Um die Entstehung von Fluktuationen in den Daten aus der MC-Simulation zu minimieren, wird der Untergrund erst nach dem Umbinnen abgezogen. Dabei muss darauf geachtet werden, dass die relative Unsicherheit  $\phi_j = \frac{\Delta N_j}{N_j}$  für jedes Flugzeitbin  $j$  erhalten bleibt. Für entsprechend viele virtuelle Ereignisse  $N_j$  wird dann innerhalb der Grenzen des Bins jeweils eine Flugzeit generiert und entsprechend Gleichung (5.4.3) in eine kinetische Energie umgerechnet. Bei dieser Umrechnung muss jedoch die eigentliche Flugstrecke zum jeweiligen Deposit verwendet werden. Weiterhin wird vereinfacht angenommen, dass alle Ereignisse innerhalb eines Flugzeitbins gleichverteilt sind, was nicht exakt, aber für kleine Intervalle eine gute Näherung ist. Die so gewonnene Flugzeit wird dann in ein mit dem universellen Binning versehenes Histogramm gefüllt. Diese Prozedur wird sowohl separat für die untergrundbehafteten Flugzeitspektren durchgeführt als auch für Histogramme, die nur die vorher ermittelten Untergründereignisse enthalten (siehe Abbildungen 5.4.11 und 5.4.12 links).

Aufgrund der Diskrepanz in den unterschiedlichen Flugstrecken kommt es im Zusammenspiel mit dem universellen Binning für alle Kanäle der PuFC zu Artefakten, die mit zunehmender Entfernung zur H19 an Stärke gewinnen. Der Maximaleffekt ist im Vergleich von Abbildung 5.4.11 mit Abbildung 5.4.12 rechts ersichtlich. Während die Fluktuationen im energiegebinnnten Flugzeithistogramm der H19 (Abbildung 5.4.11) rein statistischer Natur



**Abbildung 5.4.12:** Spontanspaltuntergrund bestimmt durch die im Text beschriebene Anpassung einer Konstanten an das Flugzeitspektrum von Kanal 1 der PuFC. Die durch das Umbinnten erzeugten Fluktuationen rechts sind ein Resultat aus der unterschiedlichen Flugstrecke, die zum einen dem universellen Binning zugrunde liegt und zum anderen der tatsächlichen Weglänge zum betrachteten Kanal der Spaltkammer entspricht. Für Kanal 1 ist dieser Effekt maximal.

sind, kommen bei den Kanälen der Plutoniumkammer noch zusätzlich solche „Transformationsartefakte“ hinzu. Diese führen jedoch nur zu einer geringfügigen Vergrößerung der Varianz innerhalb der mittleren statistischen Unsicherheit.

Nach erfolgtem Umbinnten kann dann der ebenfalls auf das gleiche Binning gebrachte Untergrund vom energiegebinnten Flugzeithistogramm abgezogen werden. Das Resultat der gesamten Prozedur ist für die H19 bereits in Abbildung 5.4.9 und für die PuFC in Abbildung 5.4.10 jeweils rechts abgebildet.

## Korrekturen

*„One could say that physicists just love to perform or interpret scattering experiments.“*

Clifford G. Shull, 10.12.1994

Wie Clifford G. Shull in seiner Bankettrede zur Nobelpreisverleihung des Jahres 1994 zum Ausdruck bringt, sind Streuexperimente eine beliebte Methode, um die Eigenschaften und die Struktur von kondensierter Materie zu erforschen. Besonders Neutronen werden dank ihrer elektrischen Neutralität bevorzugt an vielen Materialien gestreut, um Rückschlüsse auf deren Kristallstrukturen, magnetische Ordnung und ihre dynamischen Prozesse zu erhalten. Verwendet werden dazu aber überwiegend kalte, langsame oder thermische Neutronen.

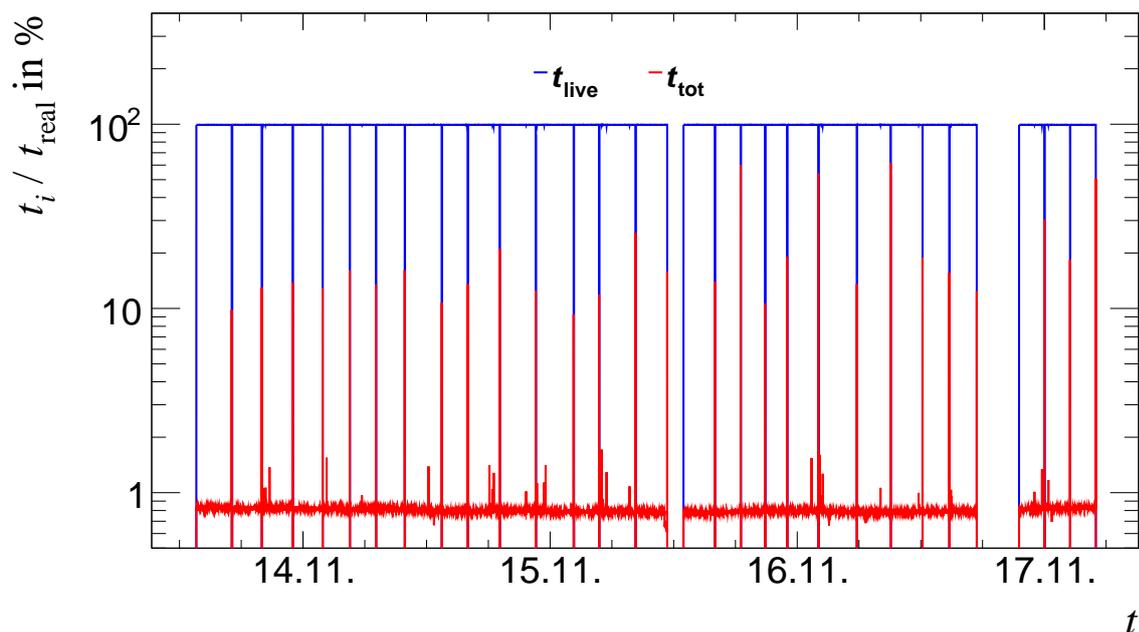
Im hier beschriebenen Experiment treten neben der erwünschten Spaltung Mehrfachstreuungsprozesse schneller Neutronen im Versuchsaufbau auf, die mithilfe von Teilchentransportsimulationen korrigiert werden müssen. Dieser Abschnitt wird sich mit diversen Korrekturen zu den aufgenommenen Daten befassen, wobei das Hauptaugenmerk auf der Behandlung der Neutronenstreuung liegen wird.

Wie bereits am Ende von Kapitel 5.1 dargelegt, stehen die in Formel (5.1.6) gegebenen neutroneninduzierten Spaltraten  $\dot{N}_{(n,f)}$  für die gemessenen Raten eines idealen Detektors. Ideal bedeutet hier, dass alle stattfindenden Spaltungen verlustfrei aufgenommen werden und sich der Detektor in einer vollkommenen (streukörperfreien) Geometrie befindet. Da jedoch mit realen Detektoren in unvollkommener Umgebung gemessen wird und auch die Datenaufnahme infolge von endlichen Verarbeitungs- und Übertragungszeiten beschränkt ist, müssen die gemessenen Größen entsprechend korrigiert werden. Die nun diskutierten Korrekturen sind dabei entsprechend ihrer Größe aufsteigend sortiert.

### Totzeit, $\alpha(\mathbf{E}(t))$

Die Nichtregistrierung von Spaltereignissen durch die ADC- und QDC-Konversionszeiten sowie durch die Auslese- und Verarbeitungszeit der Datenaufnahme wird im beschriebenen Experiment für jedes Ausleseereignis einzeln bestimmt (siehe Abb. 5.3.1, A.5 und A.5.2). Über die Dauer des gesamten Experiments ist die daraus resultierende „Totzeit“ in Abbildung 5.4.13 dargestellt.

Da sowohl PuFC als auch H19 gemeinsam an derselben Datenaufnahme angeschlossen sind, ist die relative Totzeit in beiden Kammern identisch. Über das gesamte Experiment integriert beträgt sie nur 0,8 % und macht eine komplexe flugzeitabhängige Totzeitkorrektur (siehe Ref. [Hannaske et al., 2013]) vernachlässigbar.



**Abbildung 5.4.13:** Live- (blau) und Totzeit (rot) im Verhältnis zur Echtzeit ( $t_{\text{real}}$ ) über die gesamte Dauer des beschriebenen Experiments. Die zackigen Strukturen der ansonsten größtenteils flachen Verteilung sind Resultate des Öffnens und Schließens der List-Mode Dateien.

Da nach Gleichung (5.1.6) nur das Verhältnis der aufgenommenen Spaltereignisse beider Spaltkammern in die Bestimmung des Wirkungsquerschnitts eingeht, kürzt sich die Totzeit heraus. Da die Spontanspaltrate zur Bestimmung der Anzahl der Targetatome aber in einer vollständig unabhängigen Messung gewonnen wurde und sich dieser Wert in Gleichung (5.1.6) nicht kompensiert, ist der dort bestimmte Wert des Totzeitkorrekturfaktors  $\alpha_{(\text{SF})}(E(t)) = \alpha_{(\text{SF})} = 1,0092 \pm 0,0017$  zur korrekten Berechnung notwendig.

#### Nachweiseffizienz für Spaltfragmente, $\varepsilon(E) = \varepsilon$

Wie bereits mehrfach in dieser Arbeit erwähnt wird bei der Bestimmung der Anzahl der Targetatome über die  $^{242}\text{Pu}$ -Spontanspaltrate der Wirkungsquerschnitt unabhängig von der Nachweiseffizienz für Spaltfragmente. Das gilt jedoch nur, wenn die Diskriminator-schwellen bei beiden Messungen identisch und die Eigenschaften der Spaltfragmente aus der Spontanspaltung und der neutroneninduzierten Spaltung vergleichbar sind. Der erste Teil dieser Bedingung ist erfüllt, da die Schwellen während der gesamten Laufzeit des Experiments und der Untergrundmessung nicht verändert wurden.

Die Spaltfragmentverteilungen von Spontan- und neutroneninduzierter Spaltung unterscheiden sich nur geringfügig (siehe Abb. A.3.3 und A.3.2), was nur einen kleinen Einfluss

auf die Nachweiseffizienz hat. Jedoch erhält der Plutoniumkern im Falle der neutroneninduzierten Spaltung durch das Neutron Rückstoß sowie Drehimpuls. Dieser Impulsübertrag führt zu einer Anisotropie in der Emission der Spaltfragmente, welche deren Nachweis beeinflussen kann. Obwohl eine solche Anisotropie für die neutroneninduzierte Spaltung von  $^{242}\text{Pu}$  in mehreren Messungen nachgewiesen werden konnte (aktuelle Messungen siehe z. B. [Otozai et al., 1970, Shpak, 1990]), benutzen alle gängigen Evaluierungen (JEFF 3.2, ENDF/B-V.II, JENDL 4.0 etc.) eine isotrope Winkelverteilung.

Die Auswirkung der Spaltfragmentanisotropie auf die Nachweiseffizienz von Spaltionsisationskammern wird in [Carlson, 1974] durch ein analytisches Modell beschrieben. Für Ionisationskammern, deren Targets rechtwinklig zum Neutronenstrahl angeordnet sind, ergeben sich danach folgende Ineffizienzen  $I$ :

$$I = \left( \frac{t_0}{2R} + \eta \right) \left( 1 - \frac{a_2}{2} \right) \quad \text{Target in Richtung der Neutronenquelle} \quad (5.4.4)$$

$$I = \left( \frac{t_0}{2R} - \eta + \frac{R}{2t_0} \eta^2 \right) \left( 1 - \frac{a_2}{2} \right) \quad \text{Target in Richtung des Neutronenstrahls} \quad (5.4.5)$$

Parameter dieser Funktionen sind die Dicke der Actinoidenschicht  $t_0$ , die mittlere Reichweite  $R$  eines Spaltfragmentes darin und der Anisotropieparameter  $a_2$  der Winkelverteilung der Spaltfragmente im Schwerpunktsystem. Mit  $\eta$  beschreibt Carlson das Verhältnis aus der Geschwindigkeit des spaltenden Atomkerns zur mittleren Geschwindigkeit der dabei produzierten Spaltfragmente.

$$\eta = \frac{\sqrt{\frac{T}{T_f} A_f}}{(A_n + 1)} \quad (5.4.6)$$

Hierbei sind  $T_f$  die mittlere kinetische Energie der Spaltfragmente,  $A_f$  die Masse eines typischen Spaltfragmentes,  $A_n$  die Massenzahl des Targetkerns und  $T$  die kinetische Energie der einfallenden Neutronen.

Die mittlere kinetische Energie der Spaltfragmente sowie deren mittlere Masse können einer GEF-Simulation [Schmidt et al., 2014] entnommen werden. Als Neutroneneinflenergien wird dabei das gemessene  $n\text{ELBE}$ -Spektrum verwendet. Der Anisotropieparameter wurde von Paula Salvador-Castiñeira am JRC IRMM Geel experimentell mit einer Frisch-Grid-Kammer bestimmt und mir für diese Berechnung freundlicherweise zur Verfügung gestellt. Die Daten erstrecken sich über einen Bereich von 0,3 MeV bis 3 MeV und wurden darüber hinaus bis 20 MeV konstant extrapoliert. Das ist möglich, da die Anisotropie für Neutronenenergien zwischen 1 und 9 MeV [Bjørnholm und Strutinsky, 1969, Simmons et al.,

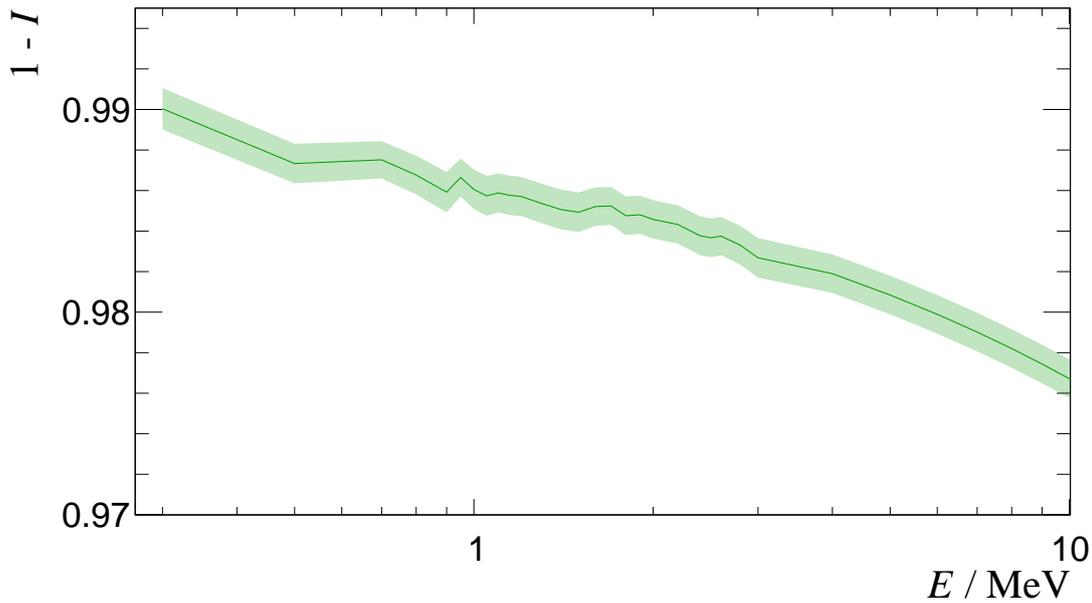
1965] nahezu konstant bleibt und  $a_2$  in der Berechnung von  $I$  nur von untergeordneter Bedeutung ist.

Die spezifische Reichweite der Spaltfragmente ist nur auf 10 % genau bekannt [Budtz-Jørgensen et al., 1985]. Für die Abschätzung hier wurde sie mit einer Geant 4-Simulation bestimmt. Die Ergebnisse der GEF-Simulation dienten dieser als Grundlage für die Erzeugung der Spaltfragmente samt ihrer kinetischen Energien.

Während der Fertigung der Actinoidenschichten wurde das in Salpetersäure gelöste Plutonium elektrolytisch auf den Si-Wafern abgeschieden. Formal sollte es sich also um metallisches Plutonium auf den Wafern handeln. Wahrscheinlicher ist jedoch, dass IV-wertiges Plutonium als Carboxylat, Oxid oder Hydroxid abgeschieden wurde. Da die Deposits aber auch eine gewisse Zeit dem Umgebungssauerstoff ausgesetzt waren, kann es bereits zur Oxidation der dünnen Schichten gekommen sein. Zusätzlich sollte darauf hingewiesen werden, dass Untersuchungen unter dem Elektronenmikroskop ergeben haben, dass das Verdunsten des Lösungsmittels auf den Targets Risse hinterlassen hat (vergleichbar mit der Morphologie eines ausgetrockneten Salzsees), die fast vollständig bis hinab zum Backing zu reichen scheinen (siehe Abb. 4(a) und 6(b) in [Vascon et al., 2015]). In der Simulation wurden daraufhin die spezifischen Reichweiten für metallisches Plutonium, diverse Plutoniumoxide ( $\text{PuO}$ ,  $\text{PuO}_2$  und  $\text{Pu}_2\text{O}_3$ ) sowie deren Kombinationen mit unterschiedlichen Anteilen von P10 berechnet. In einer konservativen Abschätzung verwenden wir im Folgenden die Kombination von Plutoniumdioxid und 10 % P10, in welcher die Spaltfragmente eine spezifische Reichweite von  $(5,9 \pm 0,6) \text{ mg/cm}^2$  haben. Mit der in Kapitel 5.4.1 bestimmten Anzahl der Plutoniumkerne wurde für dieses Gemisch eine resultierende Flächenbelegung von  $(116,2 \pm 1,2) \mu\text{g/cm}^2$  ermittelt. Das Verhältnis von Flächenbelegung zur spezifischen Reichweite ist äquivalent zum gesuchten Verhältnis von Dicke zur Reichweite  $\frac{t_0}{R}$  und unabhängig von den unbekanntem Massendichten.

Der mit Gleichung (5.4.4) bestimmte Korrekturfaktor  $I$  ist für die Plutoniumspaltkammer in Abbildung 5.4.14 gezeigt. Die Ineffizienz der H19 wurde in Ref. [Nolte et al., 2007] behandelt und ist Bestandteil der dort angegebenen Nachweiseffizienz.

Ein Vergleich der Reichweitenmodelle schwerer, geladener Teilchen in Geant 4, SRIM 2008 und MCUNED (Niederenergieerweiterung für MCNPX 2.7.0 von Patrick Sauvart [Erhard et al., 2013]) hat für die betreffenden Spaltfragmente Diskrepanzen von bis zu 20 % aufgezeigt. Da zusätzlich weder Stöchiometrie noch genaue Zusammensetzung der Actinoidenschicht hinreichend genau bekannt sind und es sich bei den Messungen der Anisotropie noch um unveröffentlichte Daten handelt, wird der Carlson-Faktor nicht zur Korrektur der Daten verwendet und nur als systematische Unsicherheit in das Ergebnis eingeschlossen.



**Abbildung 5.4.14:** Faktor zur Korrektur des Verlustes an Spaltfragmenten durch Rückstoß und Drehimpuls des Compoundkerns  $1 - I$  („Carlson-Faktor“).

### Fehlinterpretation von gestreuten Neutronen, die ihre Energie-Flugzeit-Korrelation verloren haben, $k(E(t))$

Werden Neutronen auf dem direkten Weg von der Quelle zum Detektor gestreut, bevor sie in den Spaltkammern nachgewiesen wurden, so stimmen die Energie  $E(t)$ , die man aus ihrer Flugzeit bestimmt, und ihre tatsächliche kinetische Energie  $E_n$  nicht mehr überein. Man spricht im Allgemeinen davon, dass die Energie-Flugzeit-Korrelation für diese Teilchen verloren gegangen ist. Lässt sich die kinetische Energie der Neutronen nur über die Flugzeit ermitteln, so ist man bei der Korrektur dieses Effekts auf Neutronen-transportrechnungen angewiesen. Im Gegensatz zum Experiment sind dort kinetische Energie und Flugzeit der Neutronen gleichzeitig bekannt. Für den hier beschriebenen Aufbau soll das mit den Simulationspaketen Geant 4 und MCNP 6<sup>9</sup> realisiert werden.

„Nuclear models fail (sometimes catastrophically) at predicting with reasonable accuracies the nuclear cross sections of neutrons (and other particles).“

[Mendoza und Cano-Ott, 2012].

Die Konsequenz dieses Zitates ist, dass alle Observablen, die Reaktionen mit Neutronen unter 20 MeV beschreiben, in einer Datenbank implementiert sein müssen. Neben den

<sup>9</sup>Eine Verifizierung der Ergebnisse mit FLUKA wurde ebenfalls begonnen, ist aber zum derzeitigen Zeitpunkt noch nicht abgeschlossen.

Reaktionsquerschnitten zählen dazu auch Winkelverteilungen, differentielle Querschnitte und Ausbeuten für die Produktion sekundärer Teilchen.

Ursprünglich für die Hochenergiephysik entwickelt, bietet Geant 4 mit dem „Neutron High Precision“-Paket auch die Möglichkeit, niederenergetische Neutronen ( $E < 20$  MeV) physikalisch korrekt zu transportieren. Die Grundlage dafür bildet die Geant 4-eigene G4NDL 4.5-Datenbank, die evaluierte Daten vorrangig aus der aktuellen Version von ENDF/B-VII.1 [Chadwick et al., 2011] enthält und vereinzelt durch Daten von JENDL 4.0 [Shibata et al., 2011] ergänzt wurde. Standardmäßig behandelt Geant 4 damit Reaktionen in Materialien bis zum Uran ( $Z = 92$ ). Auf einer Website der IAEA<sup>10</sup> können Datensätze anderer Evaluierungen heruntergeladen werden, mit denen fehlende Daten (z. B. der totale Streuquerschnitt der stabilen Platinisotope) ergänzt und der Datensatz mit den Transuranen erweitert werden können. Für die hier beschriebene Simulation wurden dazu die Daten aus der JEFF 3.1-Evaluierung [Koning et al., 2006] verwendet und gegebenenfalls durch Daten der neueren JEFF 3.2 ersetzt oder ergänzt.

Die physikalischen Prozesse werden in Geant 4 durch die Physics-List definiert und gesteuert. Verwendet wurde hier die vorkonfigurierte Liste *QGSP\_BIC\_HP*, welche für Neutronenenergien unterhalb von 20 MeV das beschriebene High-Precision-Neutron-Modell (HP) benutzt und oberhalb dieser Energie auf das binäre Kaskaden- (BIC, siehe [Peter et al., 1994]) und das Quark-Gluon-String-Precompound-Modell (QGSP, siehe [Folger und Wellisch, 2003]) zurückgreift. Da in dieser Arbeit aber nur Neutronenenergien kleiner als 10 MeV betrachtet werden, spielen die beiden zuletzt genannten Modelle für die folgenden Ergebnisse keine Rolle. Alle hier beschriebenen Simulationen wurden mit der Version Geant 4.10.1 ausgeführt.

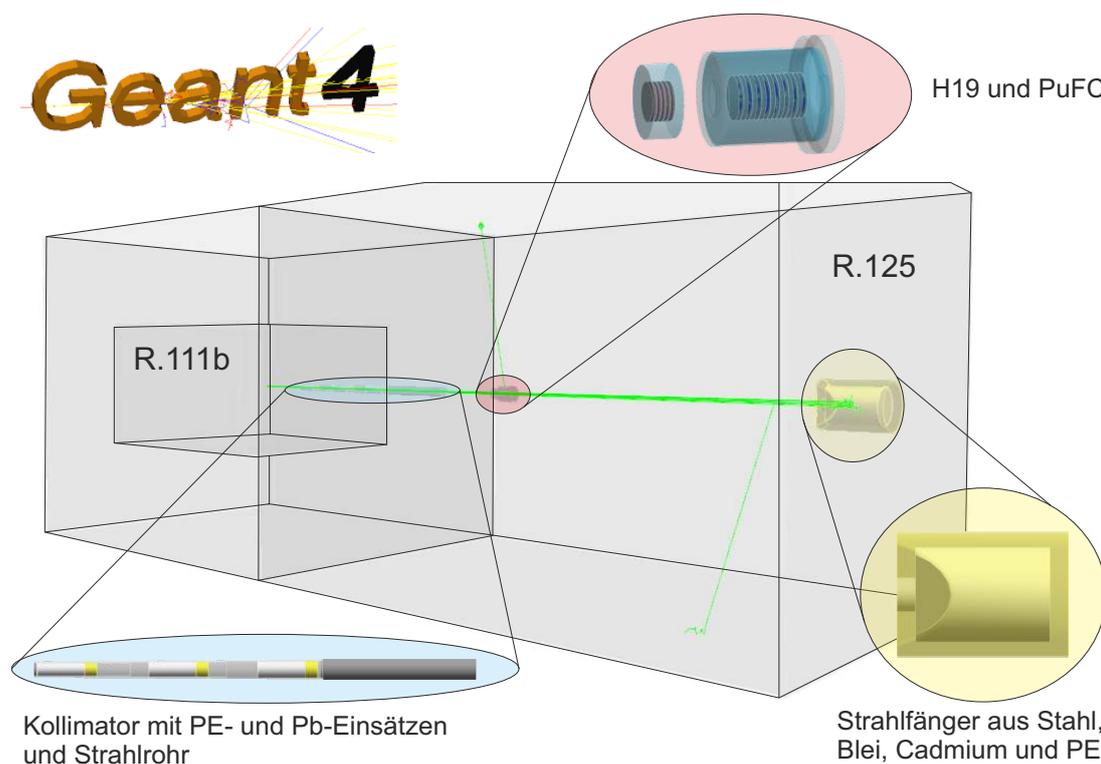
Das in Los Alamos entwickelte Simulationspaket MCNP wurde im Gegensatz zu Geant 4 für den Neutronentransport und seine Anwendungen geschrieben. Die aktuelle Version 6.1 verwendet als Basis die evaluierten Daten aus ENDF/B-VII.1, welche durch das MCNP Data Team auf Konsistenz überprüft und in einigen Fällen ( $^{56}\text{Fe}$  und  $^{61}\text{Ni}$ ) angepasst wurde.

Bei der Erstellung des Geometriemodells wurde auf eine detaillierte und in beiden Simulationen identische Realisierung geachtet. Dabei wurde auf die korrekte Zusammensetzung aller verwendeten Materialien in Strahlnähe ein besonderes Augenmerk gelegt. Das betraf natürlich die beiden Spaltkammern, aber auch den *n*ELBE-Kollimator, das Neutronenstrahlrohr und deren 25  $\mu\text{m}$  dünne Titanein- und -austrittsfenster. In der MCNP-Simulation wurde auf die Implementierung des Strahlfängers verzichtet, da aus den ersten Ergebnissen der Geant 4-Simulation bereits abzuschätzen war, dass sein Beitrag zu den Korrekturen nur von untergeordneter Rolle sein wird.

---

<sup>10</sup><http://www-nds.iaea.org/geant4>

Im Gegensatz dazu war die Kollimatorwand zwischen den Räumen 111b und 125 jedoch von Bedeutung und wurde in beiden Simulationen entsprechend berücksichtigt. Eine Darstellung des Geometriemodells der Geant 4-Simulation ist exemplarisch in Abbildung 5.4.15 zu sehen.



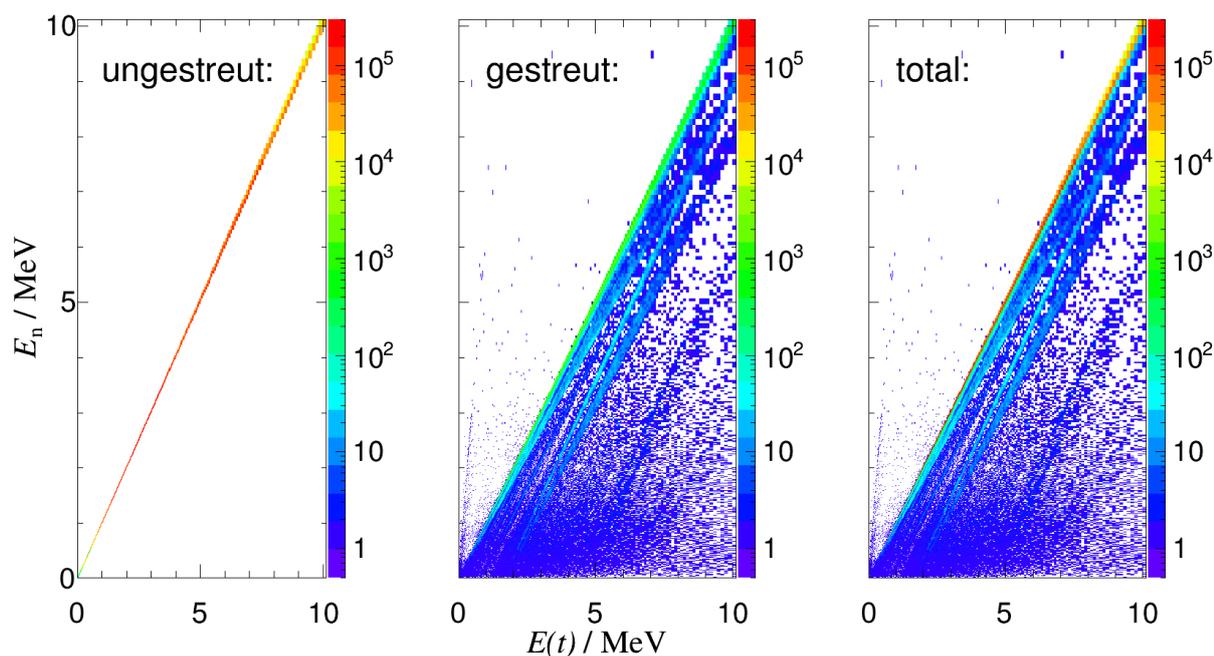
**Abbildung 5.4.15:** Geant 4-Geometriemodell des Spaltkammeraufbaus an *n*ELBE. Die Neutronenquelle befindet sich im Raum 111b. Der von ihr erzeugte Neutronenstrahl ist in Grün dargestellt.

Da der Energieverlust bei elastischer und inelastischer Streuung selbst energieabhängig ist, ist die Form des einfallenden Neutronenspektrums für die Simulation von Relevanz. Als gute Näherung kann dafür das ohne Absorber gemessene Flugzeitspektrum der H19-Spaltkammer genutzt werden (siehe Abbildung 3.0.4). Das geht jedoch nur unter der Annahme, dass sich das Neutronenspektrum auf dem Weg von der Quelle zur H19 nur wenig ändert.

Für jedes gestartete Neutron wurden sowohl in Geant 4 als auch in MCNP 6 die Energie des gestarteten Neutrons sowie Flugzeit und kinetische Energie bei der Durchquerung einer Actinoidschicht gespeichert. Für Geant 4 wurden diese Daten in einem individuell

angepassten ROOT-TTree abgelegt. In MCNP wurde ein PTRAC-File<sup>11</sup> erzeugt, welches in den entsprechenden Zellen der Actinoidenschichten den Orts- und Impulsvektor, die Flugzeit und einige weitere Observablen in eine ASCII-Datei schreibt. Für die erzeugten  $10^8$  Ereignisse betrug die Größe des TTree 20 GB und die der PTRAC-Datei 20 TB. Für die Analyse der PTRAC-Datei wurde ein Konverter (PTRACtoTTree) geschrieben, der die Ergebnisse von MCNP in die gleiche TTree-Struktur von Geant 4 bringt.

Der Vorteil der ereignisweisen Speicherung ist sowohl die Bestimmung von Korrelationen zwischen den Observablen als auch eine große Flexibilität in der Wahl des Binnings bei der späteren Analyse in Histogrammen. Ein Nachteil ist das große Datenaufkommen. Aus dem Vergleich der kinetischen Energie des gestarteten Neutrons mit der kinetischen Energie beim Nachweis im Deposit kann ermittelt werden, ob das Neutron auf seinem Weg dorthin gestreut wurde oder nicht. Anhand dieses Kriteriums können zweidimensionale Energie-Flugzeit-Histogramme für gestreute und ungestreute Neutronen erzeugt werden, die in der weiteren Berechnung eine Rolle spielen werden. Am Beispiel der Geant 4-Simulation sind diese Histogramme in Abbildung 5.4.16 gezeigt.



**Abbildung 5.4.16:** Simulierte Energie-Flugzeit-Korrelation gewonnen mit Geant 4. Um den maximalen Effekt zu verdeutlichen, wurde dazu Kanal 1 der Plutoniumspaltkammer gewählt, da sich dieser am weitesten von der Quelle entfernt befindet.

<sup>11</sup>Das „Particle Tracking“-File ist ein spezielles Ausgabeformat von MCNP, das die vollständige Rekonstruktion aller simulierten Teilchentrajektorien erlaubt.

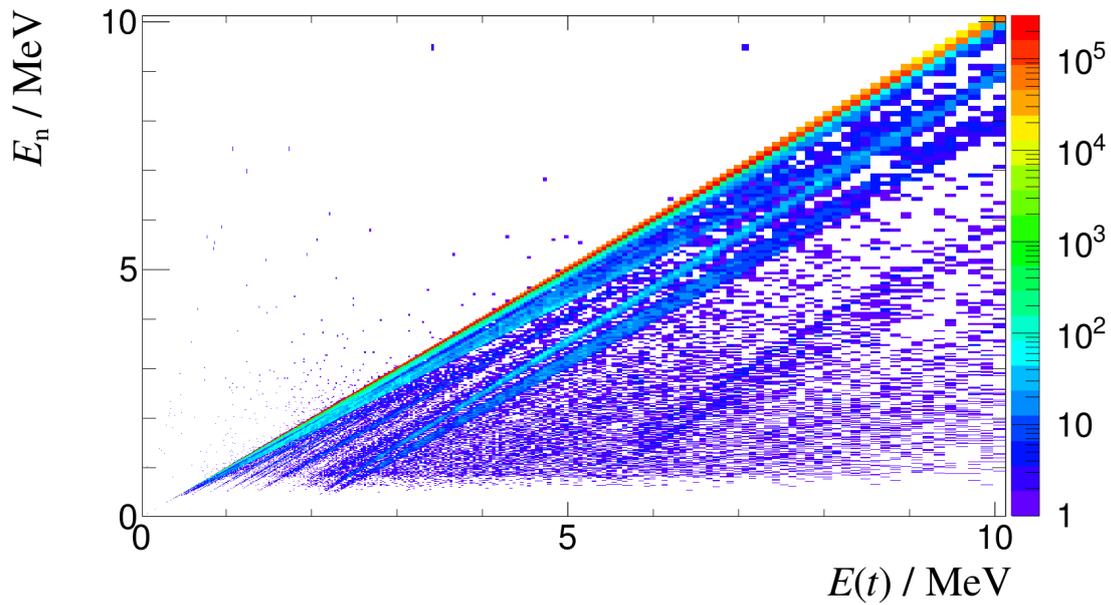
Im linken Teil dieser Abbildung ist die Energie-Flugzeit-Korrelation für ungestreute Neutronen gezeigt, die erwartungsgemäß einer Gerade mit Anstieg eins folgt. In der mittleren Abbildung sind nur die gestreuten Neutronen berücksichtigt. Man erkennt dort die Auswirkungen der beiden wesentlichen Streuprozesse. Der in Grün dargestellte Bereich entlang der Diagonalen des Bildes entspricht Neutronen, die durch elastische Streuung nur wenig ihrer ursprünglichen kinetischen Energie verloren haben. Die zu dieser Geraden parallelen Strukturen bei geringeren Energien  $E_n$  sind Resultate von inelastischer Neutronenstreuung. Da beide dem Verlauf der ungestreuten Korrelation folgen, kann man davon ausgehen, dass die Mehrheit der Streuungen erst kurz vor dem Nachweis der Neutronen in den Spaltkammern erfolgt. Es sind also vor allem die Detektormaterialien selbst, die diese Strukturen erzeugen. Das wird durch die Auswertung des Energieverlustes der inelastisch gestreuten Neutronen deutlich. Die prominenten Strukturen werden durch inelastische Streuung vor allem am ersten beziehungsweise zweiten angeregten Zustand von  $^{56}\text{Fe}$  und  $^{28}\text{Si}$  hervorgerufen. Aufgrund ihrer hohen Niveaudichte kommt es bei  $^{181}\text{Ta}$ ,  $^{194}\text{Pt}$  und  $^{195}\text{Pt}$  zu geringeren Energieverlusten durch inelastische Streuung. Im rechten Teil der Abbildung sind alle im Kanal 1 der PuFC nachgewiesenen Neutronen dargestellt.

Für die Berechnung des Korrekturfaktors  $k(E(t))$  muss man berücksichtigen, dass die gestreuten Neutronen ebenfalls noch Spaltung in den Detektoren hervorrufen können, dieses dann aber bei einer kleineren Energie. Durch Multiplikation der Energie-Flugzeit-Korrelation  $N(E, E(t))$  mit dem Spaltquerschnitt  $\sigma(E)$  an der Stelle  $E$  wird diese proportional zur Spaltrate zur Flugzeit  $t$ . Im Vergleich zu Abbildung 5.4.16 (rechts) unterscheidet sich die so bestimmte und in Abbildung 5.4.17 dargestellte Spaltrate im Wesentlichen nur durch ein Schwellenverhalten im Bereich von  $E_n = 0,7 \text{ MeV}$ .

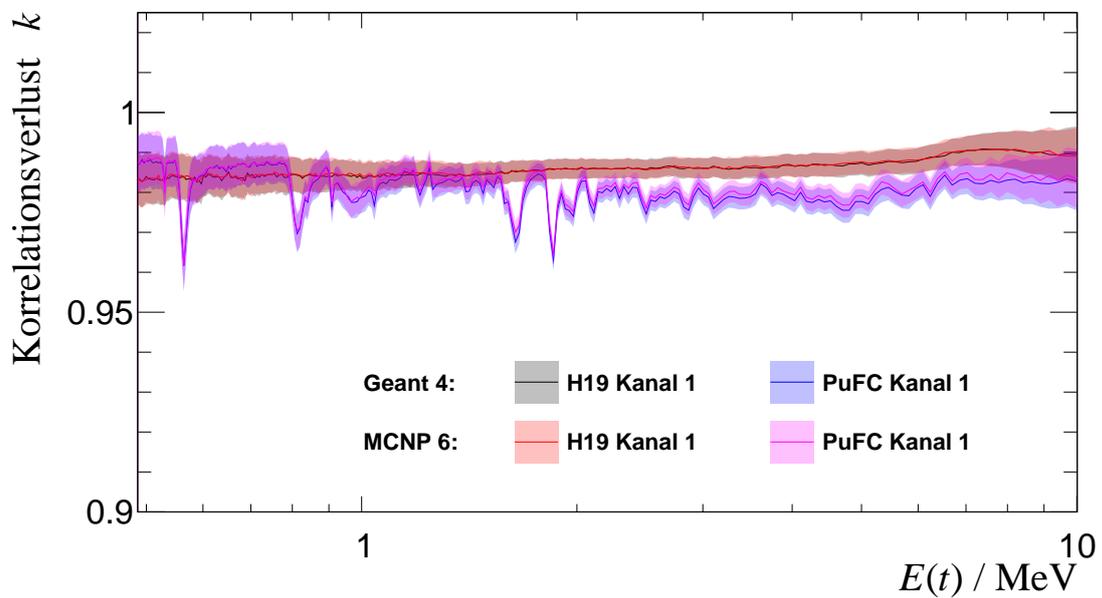
Der Korrekturfaktor für das  $i$ -te Target ist dann das Verhältnis der Spaltrate, verursacht durch ungestreute Neutronen, die ihre korrekte Energie-Flugzeit-Korrelation besitzen, zur nachgewiesenen totalen Spaltrate zur Flugzeit  $t$  (gestreute Neutronen und zu einem sehr geringen Bruchteil auch Spaltneutronen).

$$k^i(E(t)) = \frac{\int N^i(E', E(t))\sigma(E')\delta(E' - E(t))dE'}{\int N^i(E', E(t))\sigma(E')\Theta(E')dE'} \quad (5.4.7)$$

Hier entspricht  $N^i(E', E(t))$  der Häufigkeit der Neutronen mit kinetischer Energie  $E'$ , deren Flugzeit  $t$  zur  $i$ -ten Actinoidenschicht aber einer kinetischen Energie  $E(t)$  entsprechen würde. Die Delta-Distribution  $\delta(E' - E(t))$  im Integral des Zählers stellt sicher, dass nur ungestreute Neutronen berücksichtigt werden. Neutronenenergien kleiner Null werden so ebenfalls ausgeschlossen. Im Nenner wird das durch die Heaviside-Funktion  $\Theta(E')$  realisiert.



**Abbildung 5.4.17:** Mit Geant 4 simulierte Energie-Flugzeit-Korrelation, die proportional zum Spaltquerschnitt und damit zu den detektierten Spaltraten ist.



**Abbildung 5.4.18:** Vergleich der nach Gleichung (5.4.7) bestimmten Korrelationsfaktoren  $k$  exemplarisch für das erste (H19, Kanal 1, schwarz und rot) und letzte Deposit (PuFC, Kanal 1, blau und magenta) im Neutronenstrahl.

Beeindruckend ist die Übereinstimmung dieser Berechnung für die Ergebnisse beider Simulationen (siehe Abb. 5.4.18), die bei genauerer Betrachtung aber auch erwartet werden muss, da in beiden Programmen die gleichen Wirkungsquerschnitte implementiert sind.

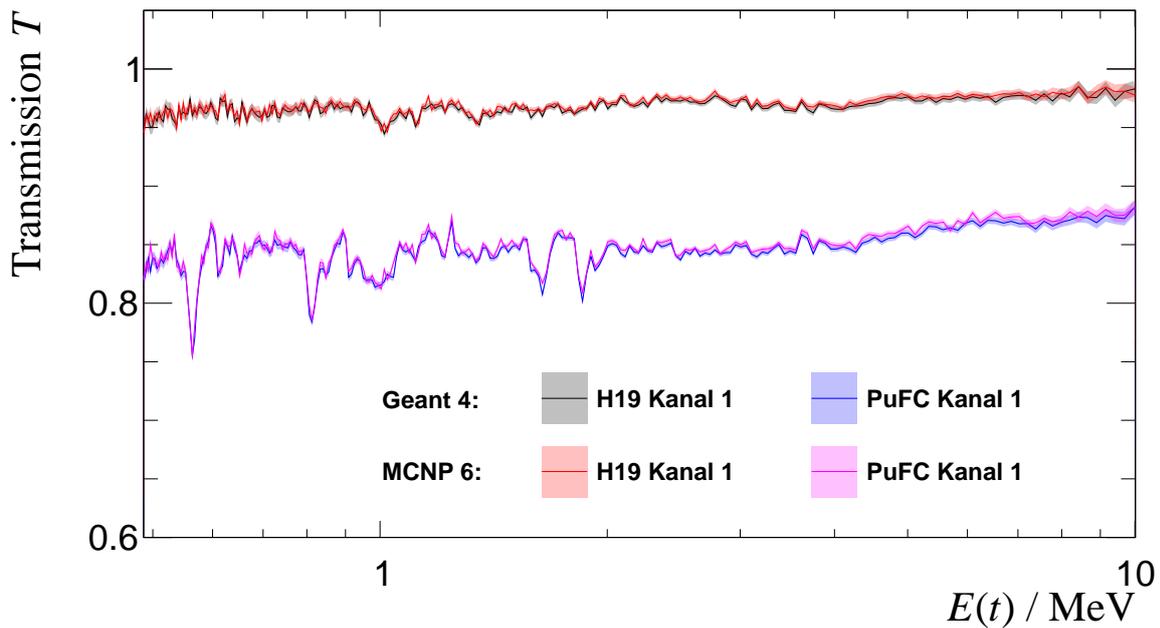
Aus Abbildung 5.4.18 geht hervor, dass unabhängig von ihrer Energie etwa 2 % der Neutronen mit Flugzeiten detektiert werden, die nicht ihrer kinetischen Energie entsprechen. Für größere Flugstrecken wird dieser Anteil für Neutronen mit Energien über 2 MeV leicht größer, was zum einen mit dem Schwellenverhalten der inelastischen Streuung zu erklären ist und zum anderen damit, dass die Neutronen in diesem Fall auch mehr Materie durchquert haben. Deutlich zu sehen ist auch das Auftreten vereinzelter Resonanzen, die im Wesentlichen auf die Streuung am Silizium zurückzuführen sind.

### Transmissionskorrektur $T(\mathbf{E}(t)) = T(\mathbf{E})$

Der Verlust von Neutronen auf dem Weg durch die Spaltkammern infolge von Absorptions- und Streuprozessen kann ebenfalls aus den Ergebnissen der gerade beschriebenen Teilchentransportsimulationen gewonnen werden. Für den auf das  $i$ -te Deposit einfallenden Neutronenstrom ergibt sich dann folgende Korrektur:

$$N_{\text{in}}^i(E) = N_{\text{in}}^0(E)T^i(E) \quad \text{mit:} \quad T^i(E) = \frac{\int N^i(E', E(t))\delta(E' - E(t))dE'}{\int N^0(E', E(t))\delta(E' - E(t))dE'} \quad (5.4.8)$$

Der Korrekturfaktor  $T^i(E)$  ist hier das Verhältnis aus allen im Target  $i$  nachgewiesenen Neutronen normiert auf die Neutronenintensität an einem beliebigen Punkt des Experiments. Da es sich um eine Relativmessung handelt, ist eine solche Normierung eigentlich nicht notwendig. Um jedoch aufzuzeigen, wie viele Neutronen allein durch die Spaltkammern herausgestreut werden, bietet es sich an, die einfallenden Neutronenintensitäten in den Actinoidenschichten mit der Intensität vor der H19 zu vergleichen. Ein solcher Vergleich wurde in Abb. 5.4.19 dargestellt, bei dem man feststellt, dass zwischen dem Eintrittsfenster der H19 und dem letzten Deposit der PuFC im Mittel etwa 15 % der Neutronen aus dem Strahl herausgestreut werden. Auch hier führt die geringe Zustandsdichte von Silizium zur Ausprägung auflösbarer Resonanzen. Am ersten H19-Deposit hat der Neutronenstrahl mit der verwendeten Normierung nur 275  $\mu\text{m}$  Tantal durchquert, dessen Niveaudichte, wie bereits erläutert, viel größer ist. Einzelne Resonanzen können deshalb nicht mehr aufgelöst werden und der Streuquerschnitt verläuft damit glatter. Auch bei dieser Korrektur kann man feststellen, dass es im betrachteten Bereich nur eine kleine Energieabhängigkeit gibt.



**Abbildung 5.4.19:** Ausgewählte Transmissionsfaktoren  $T$  nach Gleichung (5.4.8) für Kanal 1 der H19 und der PuFC.

### Beiträge weiterer Plutoniumisotope

Die neben  $^{242}\text{Pu}$  im Probenmaterial ebenfalls enthaltenen Plutoniumisotope sind ebenfalls spaltbar und verfälschen so den zu bestimmenden Wirkungsquerschnitt. Der Korrekturfaktor

$$V(E) = \frac{\sigma_{(n,f)}^{242\text{Pu}}}{\sigma_{(n,f)}^{\text{PuFC}}} \quad (5.4.9)$$

ist aufgrund des geringen Anteils der Kontaminanten (siehe Tabelle 4.1.1 (b)) jedoch fast eins. Über den betrachteten Energiebereich von 500 keV bis 10 MeV beträgt die maximale Abweichung  $|1 - V(E)| = 6 \cdot 10^{-4}$  im Mittel sogar nur  $9 \cdot 10^{-5}$ . Aufgrund dieses geringen Beitrages wird diese Korrektur im Folgenden vernachlässigt.

### Gesamtkorrekturfaktor $C(E(t))$

Mit den beschriebenen Korrekturfaktoren lassen sich die idealen Spaltraten aus Gleichung (5.1.6) mit gemessenen ersetzen. Der Zusammenhang wird dabei definiert über:

$$\dot{N}_{(n,f)}^i = \frac{\alpha_{(n,f)}^i k^i}{\varepsilon^i T^i} \dot{N}_{(n,f)}^{i,\text{det}} \quad (5.4.10)$$

Dieser Zusammenhang gilt für die neutroneninduzierten Spaltraten beider Spaltkammern.

Da sich die Korrekturen  $k$  und  $T$  für die unterschiedlichen Deposits aber unterscheiden, muss Gleichung (5.4.10) jedoch für jeden Kanal der Spaltkammer einzeln bestimmt und angewendet werden.

Für die Korrektur der Spontanspaltraten müssen Transmission und Korrelationsverlust nicht korrigiert werden, jedoch aber die Totzeit und die Nachweiseffizienz für Spaltfragmente. Es gilt deshalb:

$$\dot{N}_{(\text{SF})}^i = \frac{\alpha_{(\text{SF})}^i}{\varepsilon^i} \dot{N}_{(\text{SF})}^{i,\text{det}} \quad (5.4.11)$$

Eingesetzt in Gleichung (5.1.2) folgt dann:

$$\sigma_{(\text{n,f})}^{\text{PuFC}} = \lambda \gamma F \left( \frac{\sum_i \left( \frac{\alpha_{(\text{n,f})} k}{\varepsilon T} \dot{N}_{(\text{n,f})}^{\text{det}} \right)^{\text{PuFC}_i}}{N_{\text{in}}^0 \sum_i \left( \frac{\alpha_{(\text{SF})}}{\varepsilon} \dot{N}_{(\text{SF})}^{\text{det}} \right)^{\text{PuFC}_i}} \bigg/ \frac{\sum_i \left( \frac{\alpha_{(\text{n,f})} k}{\varepsilon T} \dot{N}_{(\text{n,f})}^{\text{det}} \right)^{\text{H19}_i}}{N_{\text{in}}^0 n_A^{\text{H19}}} \right) \sigma_{(\text{n,f})}^{\text{H19}} \quad (5.4.12)$$

Für dünne Targets mit vergleichbarer Dicke (siehe Tabelle 5.4.2) ist die Nachweiseffizienz für Spaltfragmente annähernd identisch. In obiger Formel kann  $\varepsilon^i$  also jeweils vor die Summen geschrieben werden. Unter Vernachlässigung des Carlson-Faktors (wird in der Bilanz der systematischen Unsicherheiten berücksichtigt!) konnte aufgezeigt werden, weshalb die PuFC-Nachweiseffizienzen für spontane und neutroneninduzierte Spaltungen genähert gleich groß sein müssen. Diese gerechtfertigten Annahmen führen dazu, dass  $\sigma_{(\text{n,f})}^{\text{PuFC}}$  unabhängig von  $\varepsilon^{\text{PuFC}}$  wird. Auch der unbekannte Neutronenstrom direkt vor der H19 kann so aus dieser Gleichung eliminiert werden.

Fasst man die verbleibenden Korrekturen über

$$C^i = \frac{\alpha^i k^i}{T^i} \quad (5.4.13)$$

zusammen, kann man weiter schreiben:

$$\sigma_{(\text{n,f})}^{\text{PuFC}} = \lambda \gamma F \left( \frac{\sum_i \left( C \dot{N}_{(\text{n,f})}^{\text{det}} \right)^{\text{PuFC}_i}}{\sum_i \left( \alpha_{(\text{SF})} \dot{N}_{(\text{SF})}^{\text{det}} \right)^{\text{PuFC}_i}} \bigg/ \frac{\sum_i \left( \frac{C}{\varepsilon} \dot{N}_{(\text{n,f})}^{\text{det}} \right)^{\text{H19}_i}}{n_A^{\text{H19}}} \right) \sigma_{(\text{n,f})}^{\text{H19}} \quad (5.4.14)$$

In der H19 kann nur die Summe der Spalt Ereignisse aller Deposits bestimmt werden. Daher muss für die Korrektur dieser Spaltraten eine Näherung erfolgen. Geht man davon aus, dass die  $C^i$  zwischen den einzelnen Deposits nur wenig fluktuieren, so lässt sich eine mittlere

Gesamtkorrektur für diese Spaltkammer wie folgt definieren:

$$\sum_i \left( C \dot{N}_{(n,f)}^{\text{det}} \right)^{\text{H}19_i} \approx \langle C \rangle^{\text{H}19} \sum_i \dot{N}_{(n,f)}^{\text{det}, \text{H}19_i} \quad \text{für: } C^{\text{H}19_i} \approx C^{\text{H}19_j} \forall i, j,$$

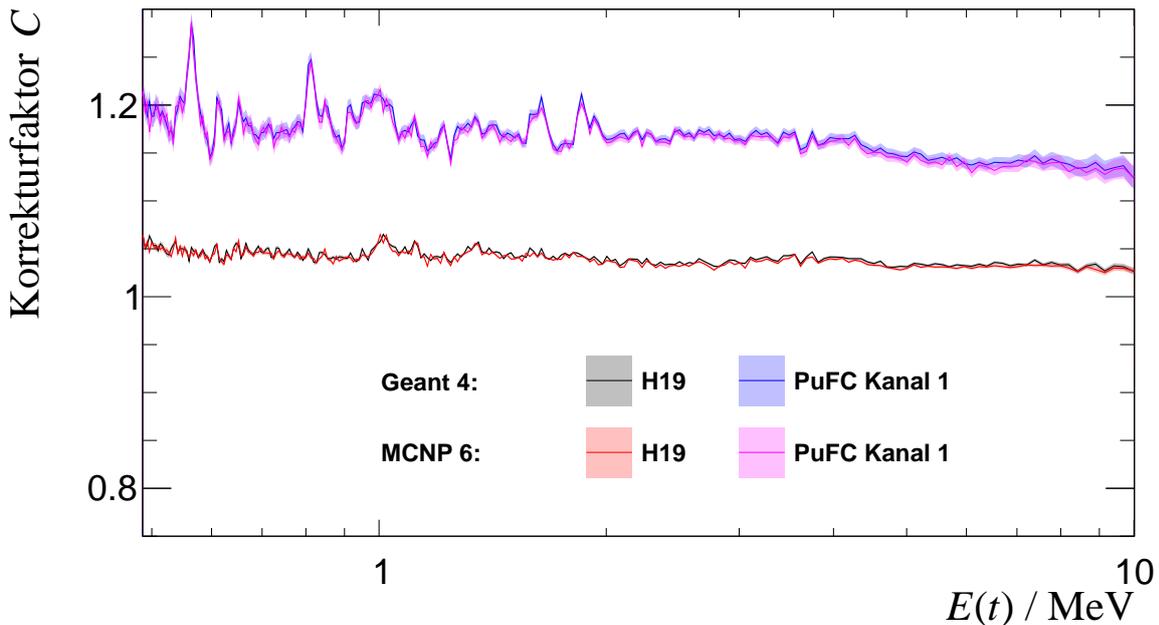
wobei  $\langle C \rangle^{\text{H}19}$  über:

$$\langle C \rangle^{\text{H}19} \approx \sum_{i=1}^{10} \frac{C^{\text{H}19_i}}{10} \quad (5.4.15)$$

angenähert werden kann.

Für die Nachweiseffizienzen  $\varepsilon^{\text{H}19_i}$  lassen sich ähnliche Betrachtungen anstellen. Die in Ref. [Nolte et al., 2007] angegebene Nachweiseffizienz  $\varepsilon^{\text{H}19} = 0,945 \pm 0,014$  bezieht sich auf die gesamte Kammer und nicht auf einzelne Deposits innerhalb dieser.

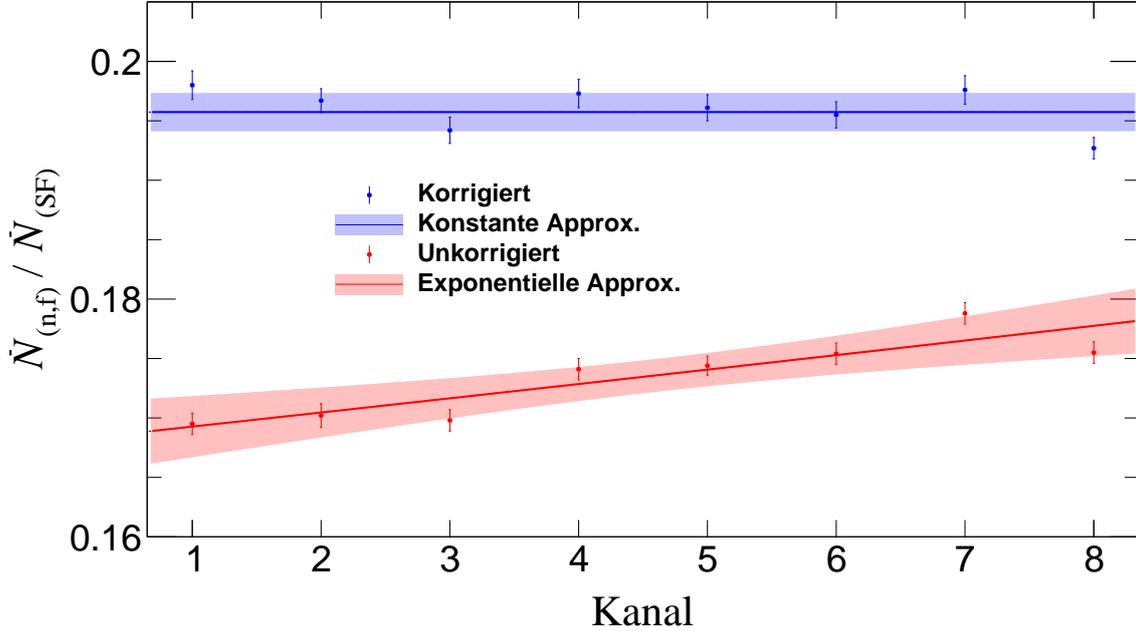
Die Energieabhängigkeit von  $\langle C \rangle^{\text{H}19}$  und von  $C^{\text{PuFC}}$  ist in Abbildung 5.4.20 exemplarisch für Kanal 1 dargestellt.



**Abbildung 5.4.20:** Maximaleffekt für die Korrektur  $C$  des ersten (H19, Kanal 1) und letzten Deposits (PuFC, Kanal 1) im Strahl nach Gleichung (5.4.13).

Anhand des Verhältnisses von neutroneninduzierter zu Spontanspaltrate  $\dot{N}_{(n,f)}/\dot{N}_{(\text{SF})}$  lässt sich die Streuwirkung von Materie zwischen den Actinoidenschichten verdeutlichen. Während die Spontanspaltung unabhängig von äußeren Einflüssen ist, die neutroneninduzierte Spaltung aber von der einfallenden Neutronenfluenz abhängt, muss das Verhältnis aus beiden von Actinoidenschicht zu Actinoidenschicht entsprechend dem Abschwächungsgesetz exponentiell abnehmen. Wird die Neutronenstreuung jedoch korrigiert, so sollte das Ver-

hältnis beider Raten für alle Deposits eine Konstante sein. In Abbildung 5.4.21 können genau diese beiden Aspekte verifiziert werden.



**Abbildung 5.4.21:** Vergleich des Verhältnisses der Raten von neutroneninduzierter Spaltung und Spontanspaltung ohne (rot) und mit (blau) Korrektur der Neutronenstreuung. Ohne Korrektur nimmt der Anteil an neutroneninduzierter Spaltung von Pu-Deposit zu Pu-Deposit exponentiell ab. Die Spontanspaltrate bleibt davon unbeeinflusst.

Beachtet man diese beiden Näherungen, so vereinfacht sich der zu bestimmende Wirkungsquerschnitt wie folgt:

$$\sigma_{(n,f)}^{\text{PuFC}} = \lambda \gamma F \left( \frac{\sum_i \left( C \dot{N}_{(n,f)}^{\text{det}} \right)^{\text{PuFC}_i}}{\sum_i \left( \alpha_{(\text{SF})} \dot{N}_{(\text{SF})}^{\text{det}} \right)^{\text{PuFC}_i}} \Bigg/ \frac{\langle C \rangle^{\text{H19}} \sum_i \left( \dot{N}_{(n,f)}^{\text{det}} \right)^{\text{H19}_i}}{(\varepsilon n_A)^{\text{H19}}} \right) \sigma_{(n,f)}^{\text{H19}} \quad (5.4.16)$$

Da sich der Referenzquerschnitt  $\sigma^{\text{Ref}} = \sigma_{(n,f)}^{\text{H19}}$  bei einer Neuevaluierung ändern kann, ist es von Vorteil nur das Verhältnis des gemessenen Querschnitts zu diesem anzugeben. Das macht eine spätere Neuberechnung einfacher und transparenter. Damit ergibt sich nun der relative Wirkungsquerschnitt für die neutroneninduzierte Spaltung zu:

$$\frac{\sigma_{(n,f)}^{\text{PuFC}}}{\sigma^{\text{Ref}}} (E(t)) = \lambda \gamma F \frac{\sum_i \left( C(E(t)) \dot{N}_{(n,f)}^{\text{det}}(E(t)) \right)^{\text{PuFC}_i}}{\sum_i \left( \alpha_{(\text{SF})} \dot{N}_{(\text{SF})}^{\text{det}} \right)^{\text{PuFC}_i}} \Bigg/ \frac{\langle C \rangle(E(t))^{\text{H19}} \sum_i \left( \dot{N}_{(n,f)}^{\text{det}}(E(t)) \right)^{\text{H19}_i}}{(\varepsilon n_A)^{\text{H19}}} \quad (5.4.17)$$

Das sich anschließende Kapitel präsentiert die auf dieser Gleichung beruhenden Ergebnisse der vorgestellten Messungen und diskutiert diese im Kontext der bestehenden experimentellen Daten sowie der gängigen Evaluierungen und einiger theoretischer Modellrechnungen.

## 5.5 Ergebnisse und Diskussion

Die Berechnung des relativen Spaltquerschnitts nach Gleichung (5.4.17) reduziert sich auf das Verhältnis der Summe aller korrigierten Flugzeitspektren der Plutoniumspaltkammer zum ebenfalls korrigierten Flugzeitspektrum der Referenzkammer.

$$\frac{\sigma_{(n,f)}^{\text{PuFC}}}{\sigma^{\text{Ref}}} = K \frac{\sum_i \left( C \dot{N}_{(n,f)}^{\text{det}} \right)^{\text{PuFC}_i}}{\langle C \rangle^{\text{H19}} \sum_i \left( \dot{N}_{(n,f)}^{\text{det}} \right)^{\text{H19}_i}}$$

Der Normierungsfaktor

$$K = \frac{\lambda \gamma F (\varepsilon n_A)^{\text{H19}}}{\sum_i \left( \alpha_{(\text{SF})} \dot{N}_{(\text{SF})}^{\text{det}} \right)^{\text{PuFC}_i}}$$

dieses Verhältnisses ist nur abhängig von Konstanten, welche in Tabelle 5.5.1 aufgeführt sind.

**Tabelle 5.5.1:** Normierungskonstanten samt ihrer Unsicherheiten

$\lambda \gamma$	$= (3,24 \pm 0,03) \cdot 10^{-19} \text{ s}^{-1}$	SF-Zerfallskonstante, siehe Abb. 5.1.1
$F$	$= (43,0 \pm 1,2) \text{ cm}^2$	abgeschiedene Targetfläche, vgl. Abb. A.1.2
$n_A^{\text{H19}}$	$= (113,8 \pm 0,3) \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$	atomare Flächenbelegung H19 [Nolte et al., 2007]
$\sum_i \alpha_{(\text{SF})} \dot{N}_{(\text{SF})}^{\text{det}}$	$= (29,688 \pm 0,004) \text{ s}^{-1}$	Spontanspaltrate, siehe Abschnitt 5.4.1
$\varepsilon^{\text{H19}}$	$= 0,945 \pm 0,014$	Effizienz H19 [Nolte et al., 2007]
$K$	$= 5,04 \pm 0,17$	Normierung

Der so berechnete relative Wirkungsquerschnitt der  $n\text{ELBE}$ -Messung ist zusammen mit den ausgewählten Messungen von Tovesson et al., Staples et al. und Weigmann et al. in Abbildung 5.5.1 dargestellt.

Obwohl diese drei Messungen alle relativ zum  $^{235}\text{U}$ -Spaltquerschnitt gemessen wurden, lagen nur die Daten von Staples als ein solcher Datensatz in der EXFOR-Datenbank vor.

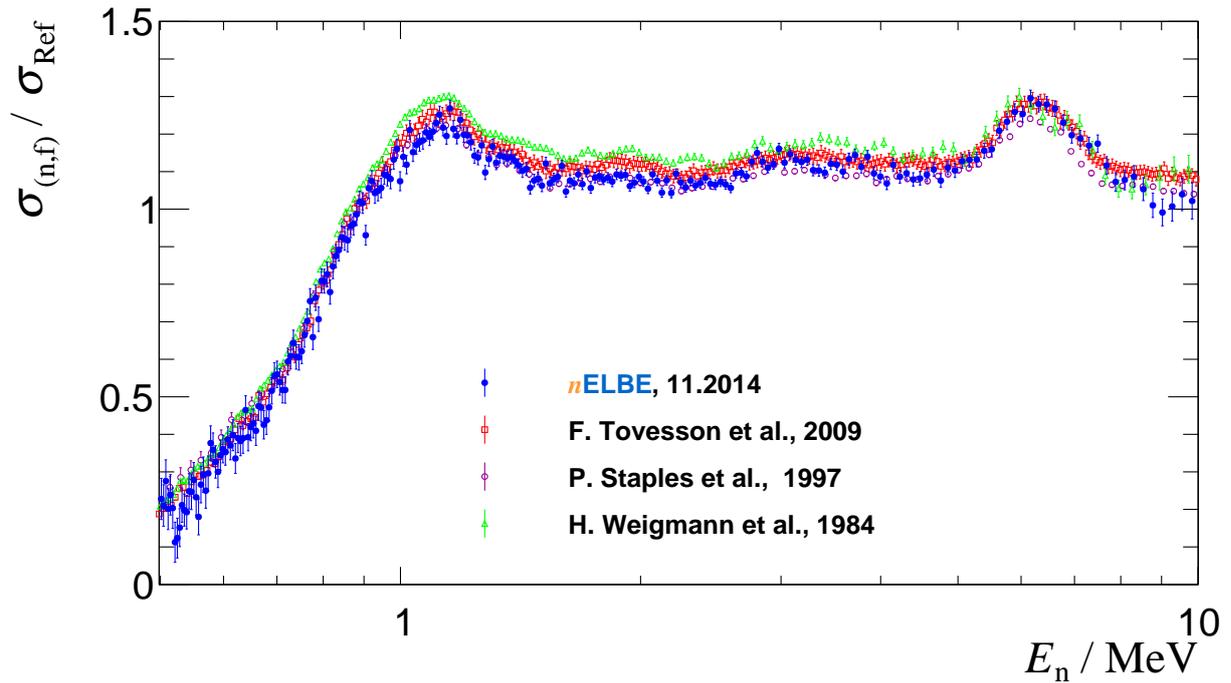


Abbildung 5.5.1: Vergleich des an  $n$ ELBE gemessenen relativen Wirkungsquerschnitts mit den Ergebnissen von Tovesson et al., Staples et al. und Weigmann et al.

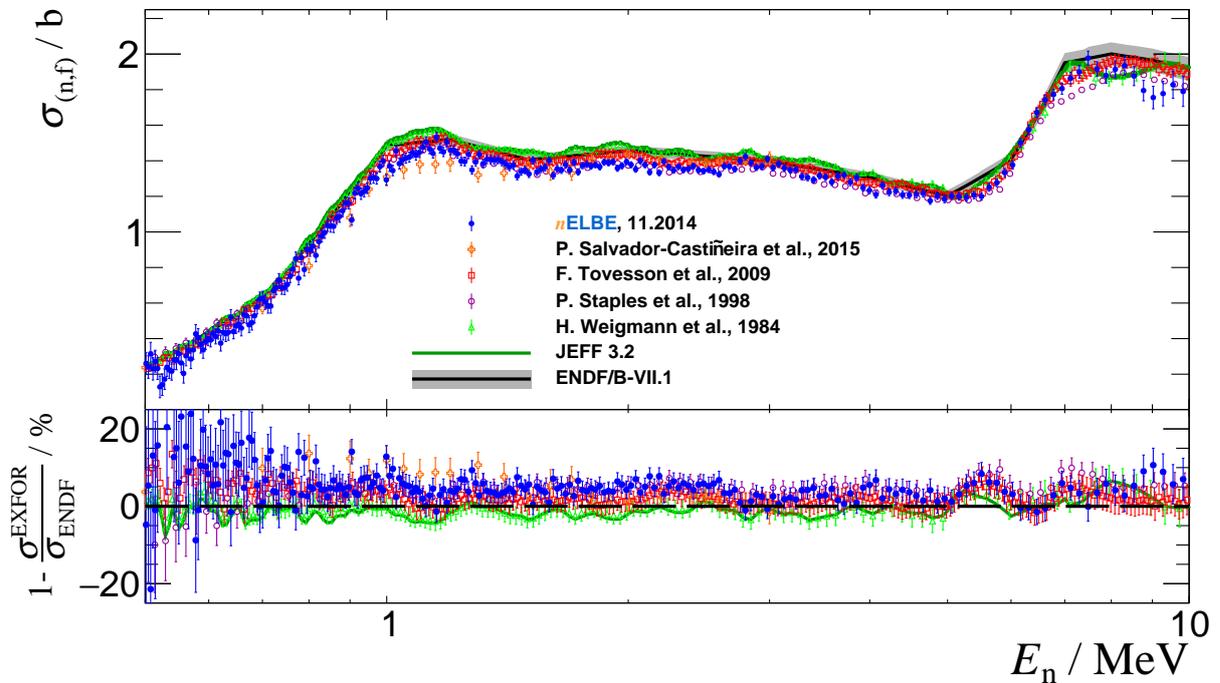
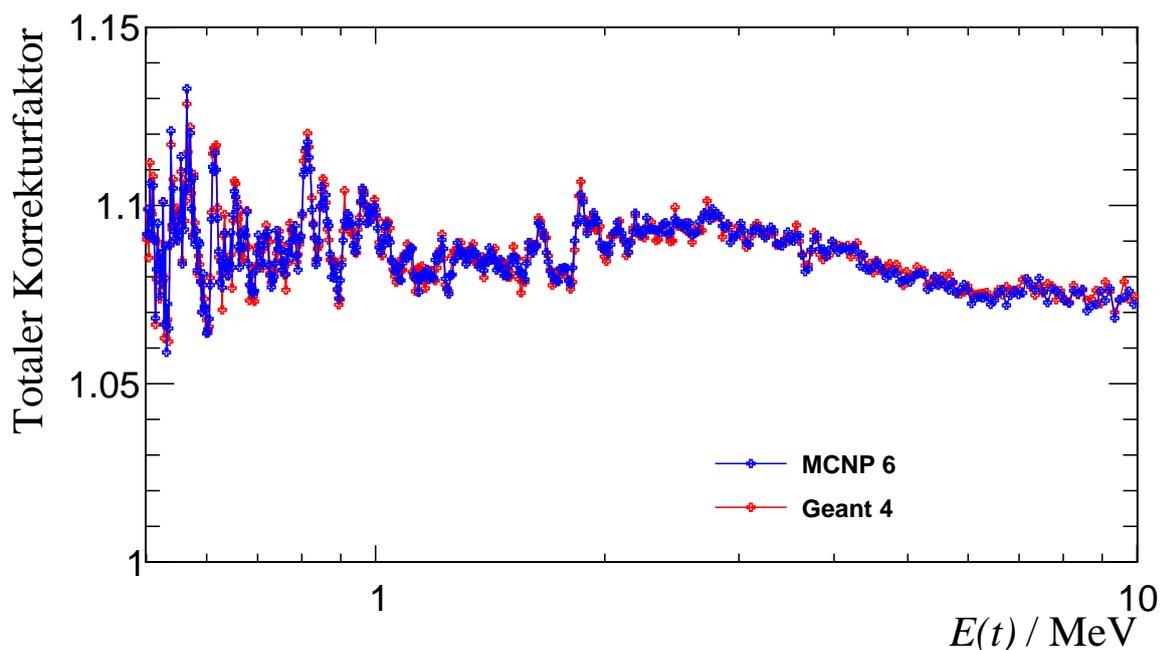


Abbildung 5.5.2: Neutroneninduzierte Spaltquerschnitte von  $^{242}\text{Pu}$ . Die verwendeten Energieintervalle der  $n$ ELBE-Daten (blaue Punkte) entsprechen einem 2 ns-Flugzeitbinning.

Die absoluten Wirkungsquerschnittsdaten von Weigmann und Tovesson wurden deshalb durch den im Datensatz angegebenen Referenzquerschnitt geteilt. Leider konnte die Messung von [Salvador-Castiñeira et al., 2015] nicht mit in diese Darstellung integriert werden. Ihre Messwerte wurden in unterschiedlichen Energiebereichen relativ zu verschiedenen Referenzquerschnitten ( $^{237}\text{Np}$ ,  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$ ) bestimmt und im Anschluss kombiniert. Eine einfache Division durch den jeweiligen Referenzquerschnitt ist so nicht möglich, da das zu starken Korrelationen der Messwerte führt. Um diese dennoch für einen Vergleich zu nutzen, wurden alle anderen Messungen auf den aktuellen  $^{235}\text{U}$ -IAEA-Standard [Badikov et al., 2007] renormiert und zusammen in Abbildung 5.5.2 dargestellt.

Da die Neutronenstreuung für jede Probenschicht individuell bestimmt wurde, stellt sich die Frage, welchen Beitrag am ermittelten Querschnitt diese Korrektur insgesamt einnimmt. Aus dem Verhältnis des korrigierten zum unkorrigierten Wirkungsquerschnitts lässt sich die Gesamtstreckkorrektur des Aufbaus ableiten. Sie ist sowohl für die Geant 4 als auch für die MCNP 6-Simulation in Abbildung 5.5.3 abgebildet.



**Abbildung 5.5.3:** Totaler Korrekturfaktor für die Neutronenstreuung bestimmt mit MCNP 6 (blau) und Geant 4 (rot). Der energieabhängige Faktor ist das Verhältnis aus korrigiertem Wirkungsquerschnitt zum unkorrigierten.

Kapitel A.7 des Anhangs zeigt eine weitere, komplementäre Herangehensweise zur Berechnung des Spaltquerschnitts auf. Anders als im oben beschriebenen Fall wird dort für jede Actinoidschicht der PuFC ein eigenständiger Wirkungsquerschnitt berechnet und im Anschluss das gewichtete Mittel aus allen acht Querschnitten gebildet. Auf diese Weise konnte

zum einen überprüft werden, ob die entwickelte Auswertemethode der Messungen konsistent ist, und zum anderen ob alle Targets vergleichbare Ergebnisse für den Querschnitt und seine Unsicherheit liefern. Beides konnte bestätigt werden. Die sich nun anschließende Diskussion der Ergebnisse ist also auf beide Methoden der Querschnittsberechnung anwendbar.

### 5.5.1 Diskussion

Auf den ersten Blick sieht man in Abbildung 5.5.2 die gute Übereinstimmung der  $n$ ELBE-Daten mit den anderen Experimenten und den zwei ebenfalls dargestellten Evaluierungen. Für den relativen Querschnitt zwischen 0,5 und 10 MeV beträgt die mittlere Abweichung dieser Daten zur Messung von Tovesson et al. ( $2,48 \pm 0,12$ ) %, zur Messung von Staples et al. ( $0,80 \pm 0,13$ ) % und zu Weigmann et al. ( $5,36 \pm 0,13$ ) %. Die mittleren Abweichungen des gemessenen Absolutquerschnittes zu ENDF/B-VII.1 und JEFF 3.2 sind in Tabelle 5.5.2 zusammengefasst.

**Tabelle 5.5.2:** Mittlere Abweichungen  $\Delta$  gemessener  $^{242}\text{Pu}$ -Spaltquerschnitte von der ENDF/B-VII.1- und der JEFF 3.2-Evaluierung sowie deren reduziertes  $\chi^2$  im Energiebereich 0,5-10 MeV.

Messung	ENDF/B-VII.1		JEFF 3.2	
	$\Delta$ in %	$\chi^2/n$	$\Delta$ in %	$\chi^2/n$
Weigmann et al., 1984	$-0,85 \pm 0,06$	4,19	$0,87 \pm 0,06$	1,07
Staples et al., 1997	$5,28 \pm 0,07$	6,37	$5,87 \pm 0,07$	9,03
Tovesson et al., 2009	$2,24 \pm 0,11$	1,24	$2,98 \pm 0,11$	2,10
Salvador-Castiñeira et al., 2014	$3,4 \pm 0,4$	2,62	$4,8 \pm 0,4$	3,13
diese Arbeit	$4,27 \pm 0,11$	1,90	$5,56 \pm 0,11$	2,32

Dort sieht man, dass die aufgeführten Messungen im Mittel um etwa 3-4 % von den Evaluierungen abweichen. Die Abweichung  $\Delta$  ist dabei definiert über:

$$\Delta = 1 - c \quad \text{mit:} \quad c = \frac{\sigma^{\text{EXFOR}}(E_n)}{\sigma^{\text{Eval}}(E_n)} \quad (5.5.1)$$

Das mittlere Verhältnis  $c$  aus den EXFOR-Daten und der jeweiligen Evaluierung wurde über eine Least-Square-Anpassung gewonnen. Das reduzierte  $\chi^2$  dieser Anpassung ist damit ein Verträglichkeitsmaß für die Energieabhängigkeit des gemessenen Querschnitts. Anhand dieser Werte lässt sich feststellen, dass der Verlauf der  $n$ ELBE-Messdaten die Evaluierungen bestätigt. Die auffallend gute Übereinstimmung der Weigmann-Messung

mit der JEFF 3.2-Evaluierung ist darauf zurückzuführen, dass die Evaluierung bis 9 MeV ausschließlich auf dieser Messung beruht und im Anschluss nur Daten von [Behrens et al., 1978] verwendet, die jedoch auf den Messwert der Weigmann-Messung bei 9 MeV normiert sind.

Die ENDF/B-VII.1-Evaluierung beruht für  $^{242}\text{Pu}(n,f)$  im Wesentlichen auf der japanischen Evaluierung JENDL 4.0, die im Gegensatz zu JEFF 3.2 auf einer Vielzahl von Messungen basiert und durch Berechnungen mit dem CCONE-Code [Iwamoto, 2007] ergänzt wurde. Bis auf die Daten von Weigmann et al. stimmen alle präsentierten Datensätze mit dieser Evaluierung besser überein. Nichtsdestotrotz ist die Abweichung der Weigmann-Daten auch zu ENDF/B-VII.1 am geringsten, wenn man sie mit den anderen Experimenten vergleicht. Mit einem reduzierten  $\chi^2$  von 4,19 lässt sich jedoch eine relativ große Diskrepanz in der Energieabhängigkeit feststellen.

Während es zwischen 1 und 5 MeV eine sehr gute Übereinstimmung der  $n\text{ELBE}$ -Daten mit ENDF/B-VII.1 gibt, sind die Messwerte unterhalb 800 keV tendenziell etwas niedriger. Gerade in diesem Bereich sind auch die Daten von Tovesson et al. niedriger, was auf eine unzureichende Beschreibung des Querschnitts durch die Evaluierung für diese Energien hindeuten könnte. Die großen statistischen Unsicherheiten in diesem Energiebereich infolge der starken Abnahme des  $n\text{ELBE}$ -Neutronenflusses sowie des Spaltquerschnitts allgemein lassen jedoch kein endgültiges Urteil diesbezüglich zu.

Bei 0,53 MeV und 0,56 MeV finden sich gleich zu Beginn der ansteigenden Flanke zwei lokale Minima. Ob es sich dabei um statistische Fluktuationen oder um Absorptionsminima, hervorgerufen durch resonante Neutronenstreuung am Silizium des Trägermaterials handelt, lässt sich jedoch nicht klären. Der Korrekturfaktor weist in der Nähe dieser beiden Energien zwar entsprechende Resonanzen auf, die mittlere Streukorrektur beträgt hier jedoch nur etwa 10 %. Die statistischen Unsicherheiten sind mit  $\approx 17\%$  jedoch fast doppelt so groß. Auch in diesem Fall lassen die großen statistischen Unsicherheiten keine endgültigen Schlussfolgerungen zu.

Auch für Neutronenenergien oberhalb von 5 MeV weicht der bestimmte Querschnitt von beiden Evaluierungen<sup>12</sup> deutlich ab. Dieses Verhalten an der Spaltbarriere von  $^{242}\text{Pu}$  (Beginn der „second chance fission“) zeigen aber alle ausgewählten Datensätze, was ein deutlicher Hinweis auf eine fehlerhafte Beschreibung durch die Evaluierungen ist. Für 8 MeV ist der Verlauf von ENDF/B-VII.1 und JEFF 3.2 gegenläufig. Die  $n\text{ELBE}$ - und die Tovesson-Messung sind auch hier wieder miteinander verträglich und befinden sich genau zwischen ENDF und JEFF.

---

<sup>12</sup>Obwohl ENDF/B-VII.1 im Bereich zwischen 5 und 7 MeV 28 Datenpunkte enthält, hat die Evaluierung dort nur 3 Stützstellen. Zwischen diesen Stützstellen wurde augenscheinlich linear interpoliert. Die Abweichungen der EXFOR-Daten in diesem Energiebereich sind wahrscheinlich hauptsächlich durch diese Interpolation bedingt.

### 5.5.2 Unsicherheiten

Tabelle 5.5.3 enthält eine Übersicht der im Experiment auftretenden statistischen und systematischen Unsicherheiten.

**Tabelle 5.5.3:** Beiträge zur  $1\sigma$ - Unsicherheit des bestimmten Wirkungsquerschnitts für Neutronenenergien zwischen 0,5-10 MeV für ein 2 ns-Flugzeitbinning.

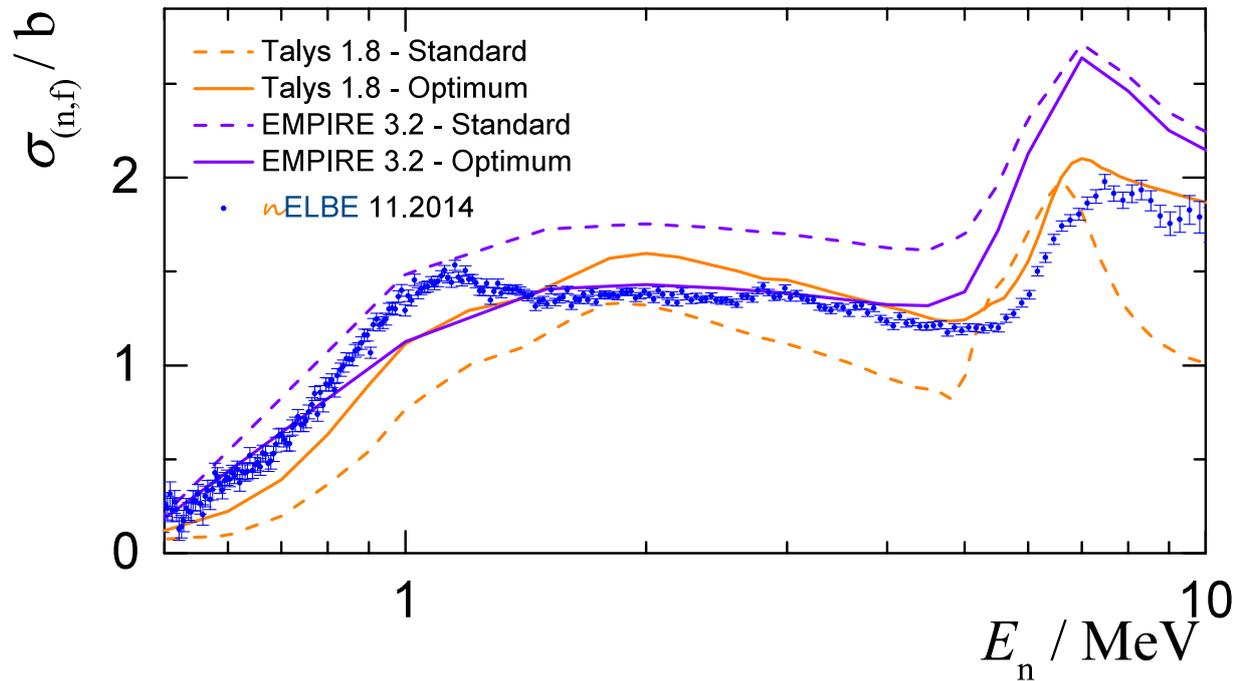
Beitrag	$\Delta x/x$ in %		
	min	max	mittel
<b>statistisch:</b>			
Zählstatistik (untergrundbereinigt)	1,1	47,4	4,9
<b>systematisch:</b>			
Normierung $K$			3,4
Referenzquerschnitt $\sigma^{\text{Ref}}$	0,6	0,9	0,7
Streukorrektur $C$	0,19	0,24	0,21
„Carlson-Faktor“ $I$ , siehe Abbildung 5.4.14	1,0	2,3	1,6
<b>kombiniert:</b>			<b>3,8</b>

Sowohl mit der mittleren statistischen Unsicherheit als auch mit der kombinierten systematischen Unsicherheit konnte damit das Ziel dieser Arbeit, die Bestimmung des neutroneninduzierten Wirkungsquerschnitt von  $^{242}\text{Pu}$  für schnelle Neutronen mit Unsicherheiten unter 5 %, erreicht werden.

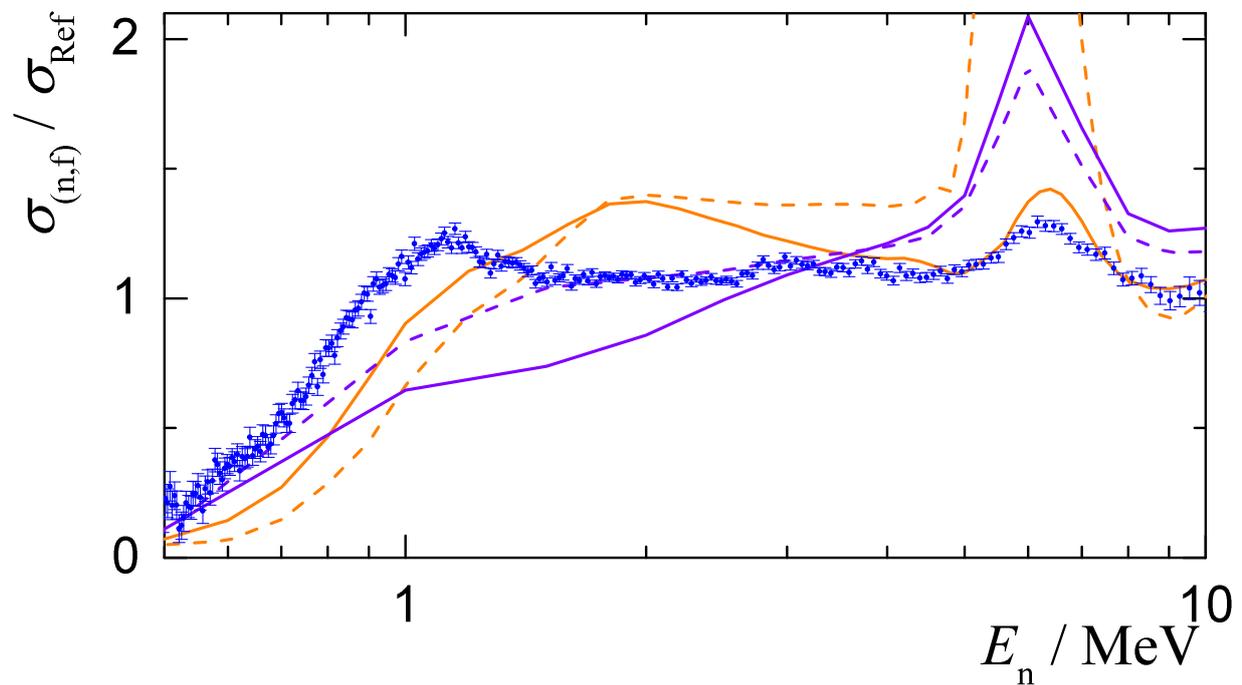
### 5.5.3 Vergleich mit Kernreaktionsrechnungen

Im Vergleich zu Ergebnissen aus Kernreaktionsrechnungen zeigen alle der hier betrachteten experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitte erhebliche Abweichungen. In Abbildung 5.5.4 ist das exemplarisch für Rechnungen mit dem europäischen Reaktionscode Talys und seinem amerikanischen Pendant EMPIRE verdeutlicht. Für beide Programme wurde jeweils eine Rechnung mit den Standard-Parametern und eine mit einem optimierten Parametersatz abgebildet. Eine ausführliche Diskussion der verwendeten Parameter in beiden Programmen ist Kapitel 2.2 zu entnehmen.

Die Ergebnisse beider Rechnungen verdeutlichen eindrucksvoll, dass es sich bei der Kernspaltung um eine der komplexesten Kernreaktionen handelt, deren Wirkungsquerschnitt von aktuellen Kernreaktionscodes nur unzureichend wiedergegeben wird.



(a) absoluter Spaltquerschnitt



(b) relativer Spaltquerschnitt

**Abbildung 5.5.4:** Vergleich der  $n$ ELBE-Daten mit den Kernreaktionsrechnungen von Talys 1.8 und EMPIRE 3.2 aus Kapitel 2.2.



## 6 Zusammenfassung und Ausblick

Der neutroneninduzierte Spaltquerschnitt von  $^{242}\text{Pu}$  wurde für schnelle Neutronen mit Energien zwischen 0,5 und 10 MeV relativ zum  $^{235}\text{U}$ -Spaltquerschnitt mit hoher Präzision bestimmt. Die ermittelten systematischen Unsicherheiten in diesem Energiebereich betragen 3,8 %, die statistischen circa 4,9 %. Zu diesem Zweck wurde eine Spaltionsisationskammer konzipiert, konstruiert und gebaut. Mit sehr dünnen und homogenen Actinoidenschichten konnten der Energieverlust der Spaltfragmente im Targetmaterial minimiert und eine hervorragende Trennung zwischen Spaltsignalen und Untergrund erreicht werden. Die hohe Eigenaktivität der Schichten von etwa 1 MBq pro Actinoidenprobe und die experimentellen Rahmenbedingungen machten eine massive und abgedichtete Kammer aus Strahlenschutzgründen notwendig. Die Zählgasversorgung wurde unter den gleichen Randbedingungen entwickelt und beinhaltet mehrere Sicherheitsmechanismen, die ein Austreten von radioaktivem Material aus der Kammer unterbinden sollen.

Zur Bestimmung des Wirkungsquerschnitts für die neutroneninduzierte Spaltung wurde ein Experiment an  $n\text{ELBE}$  am Zentrum für Hochleistungsstrahlenquellen ELBE des Helmholtz-Zentrums Dresden-Rossendorf aufgebaut. Für die Spaltkammer entwickelte schnelle Vorverstärker konnten den Anteil des Pile-ups stark reduzieren und trugen zur Verbesserung des Signal-zu-Untergrund-Verhältnisses bei.

Die Verwendung von acht einzeln ausgelesenen Actinoidenschichten reduzierte die statistischen Unsicherheiten in der zur Verfügung stehenden Messzeit. Die höhere Streu- und Absorptionwirkung dieses Aufbaus konnte durch aufwändige Teilchentransportrechnungen mit MCNP 6 und Geant 4 korrigiert werden. Dieser Teil der Arbeit hat gezeigt, dass beide Programme für den Neutronentransport im betrachteten Energiebereich identische Ergebnisse liefern.

Die Nachweiseffizienz für Spaltfragmente hat den Spaltwirkungsquerschnitt nicht beeinflusst, da sowohl die Messung der neutroneninduzierten Spaltung als auch die der Spontanspaltung von  $^{242}\text{Pu}$  (zur Bestimmung der Anzahl der Probenatome) unter identischen Bedingungen durchgeführt wurden. Sie ist sonst eine aufwändig zu bestimmende Größe und kann oft nur durch Simulationsrechnungen oder Messungen in kalibrierten Neutronenfeldern ermittelt werden.

Die gewonnenen Querschnitte sind in guter Übereinstimmung mit ausgewählten Experimenten und den Kerndatenevaluierungen. Die mittlere Gesamtabweichung zur ENDF/B-VII.1-Evaluierung ist geringer als 5 % und zur europäischen JEFF 3.2 geringer als 6 %. Im detaillierten Vergleich zeigen sich bei bestimmten Energien systematische Abweichungen einiger experimenteller Datensätze von diesen beiden Evaluierungen. Während ENDF/B-VII.1 eine Vielzahl experimenteller Daten neben theoretischen Modellrechnungen verwendet, beruht JEFF 3.2 im betrachteten Energiebereich im Wesentlichen auf der Messung von [Weigmann et al. \[1985\]](#). Die *n*ELBE-Daten können zur Verbesserung der Evaluierungen beitragen, da sie unter anderen systematischen Unsicherheiten bestimmt wurden. Auch zur Optimierung von Kernreaktions-Codes können die hier präsentierten Daten wertvolle Erkenntnisse liefern und bei der Modellierung von Spaltwahrscheinlichkeiten helfen.

Komplementär zur hier vorgestellten Messmethode konnte die Anzahl der Targetatome im kalibrierten Neutronenfeld der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt Braunschweig unabhängig von der  $^{242}\text{Pu}$ -Spontanspaltrate bestimmt werden. Diese Messung befindet sich noch in der Auswertung und ist nicht Teil dieser Arbeit. Eine weitere Messung relativ zu einer der  $^{242}\text{Pu}$ -Spaltkammer baugleichen und ebenfalls an der PTB Braunschweig kalibrierten  $^{235}\text{U}$ -Spaltkammer an *n*ELBE konnte ebenfalls noch nicht ausgewertet werden und wird in Kombination mit den beiden anderen Messungen zur weiteren Verbesserung des  $^{242}\text{Pu}$ -Spaltquerschnitts beitragen.

Eine Versuchsapparatur zur Bestimmung der Anzahl der spaltbaren Pu-Kerne über  $\alpha$ -spektroskopische Messungen wurde ebenfalls konzipiert und befindet sich im Aufbau. Diese Messung wird eine vom Spaltquerschnitt unabhängige Aussage über diese wichtige Größe machen können.

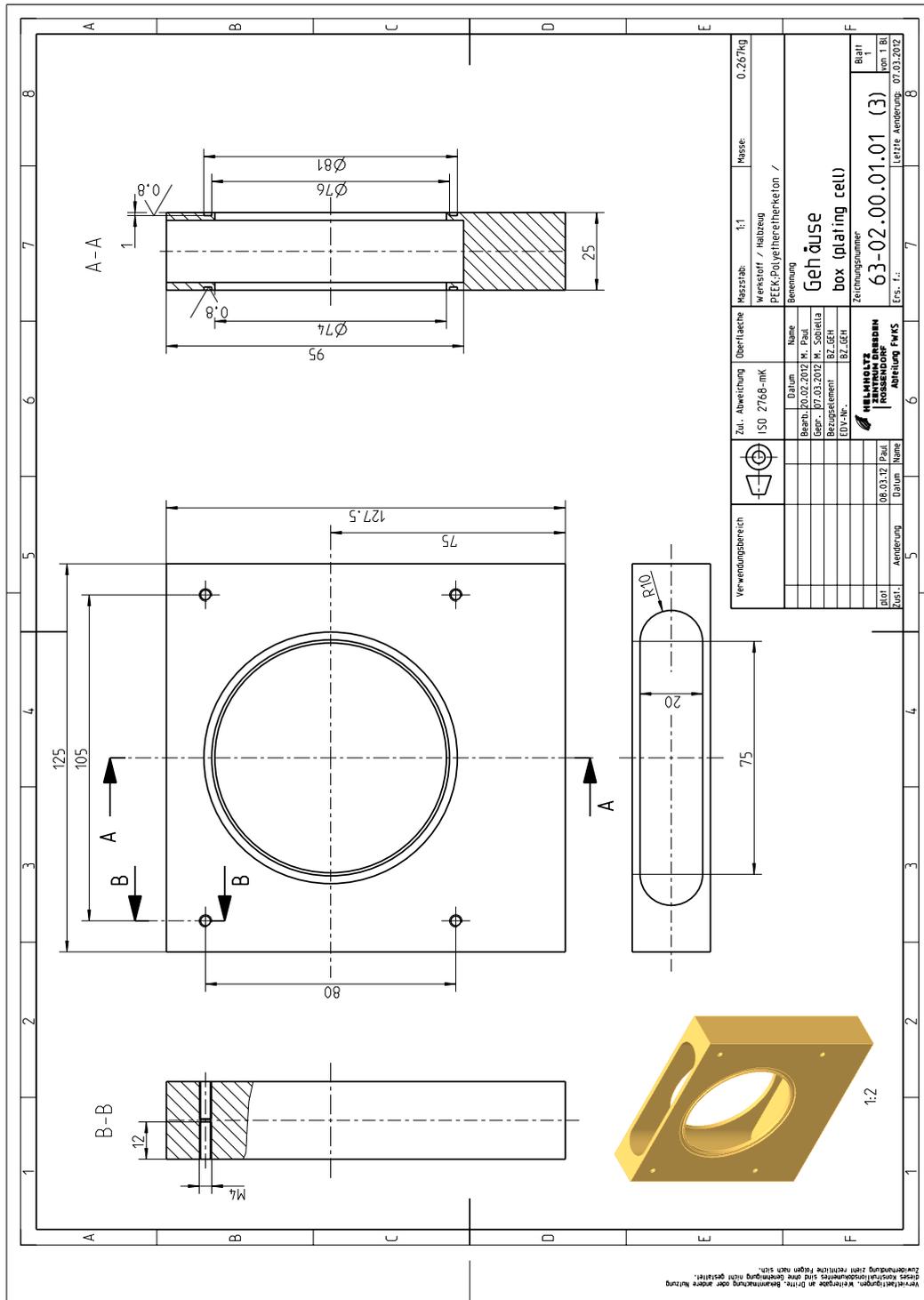
Wie in [\[Salvador-Castiñeira et al., 2015\]](#) gezeigt werden konnte, führt eine Erhöhung der Driftgeschwindigkeit der Elektronen im Kammergas zu einer signifikanten Reduktion des  $\alpha$ -Pile-ups. Eine noch bessere Trennung zwischen Spaltfragmenten und  $\alpha$ -Untergrund könnte bei Verwendung von Methan oder Tetraflourkohlenstoff als Kammergas erreicht werden. Diese Modifikation ist bereits in Planung und wird demnächst an *n*ELBE erprobt.

Da die Bestimmung des Flächeninhalts der abgeschiedenen Actinoidenschichten die größte systematische Unsicherheit beinhaltet, sollte diese Größe genauer bestimmt werden. Eine Auswertung von Röntgenfotografien der Proben, aufgenommen bei Röntgenenergien, welche einmal charakteristisch für das Silizium des Trägermaterials und einmal für das Plutonium sind, könnte diese Messunsicherheit reduzieren.

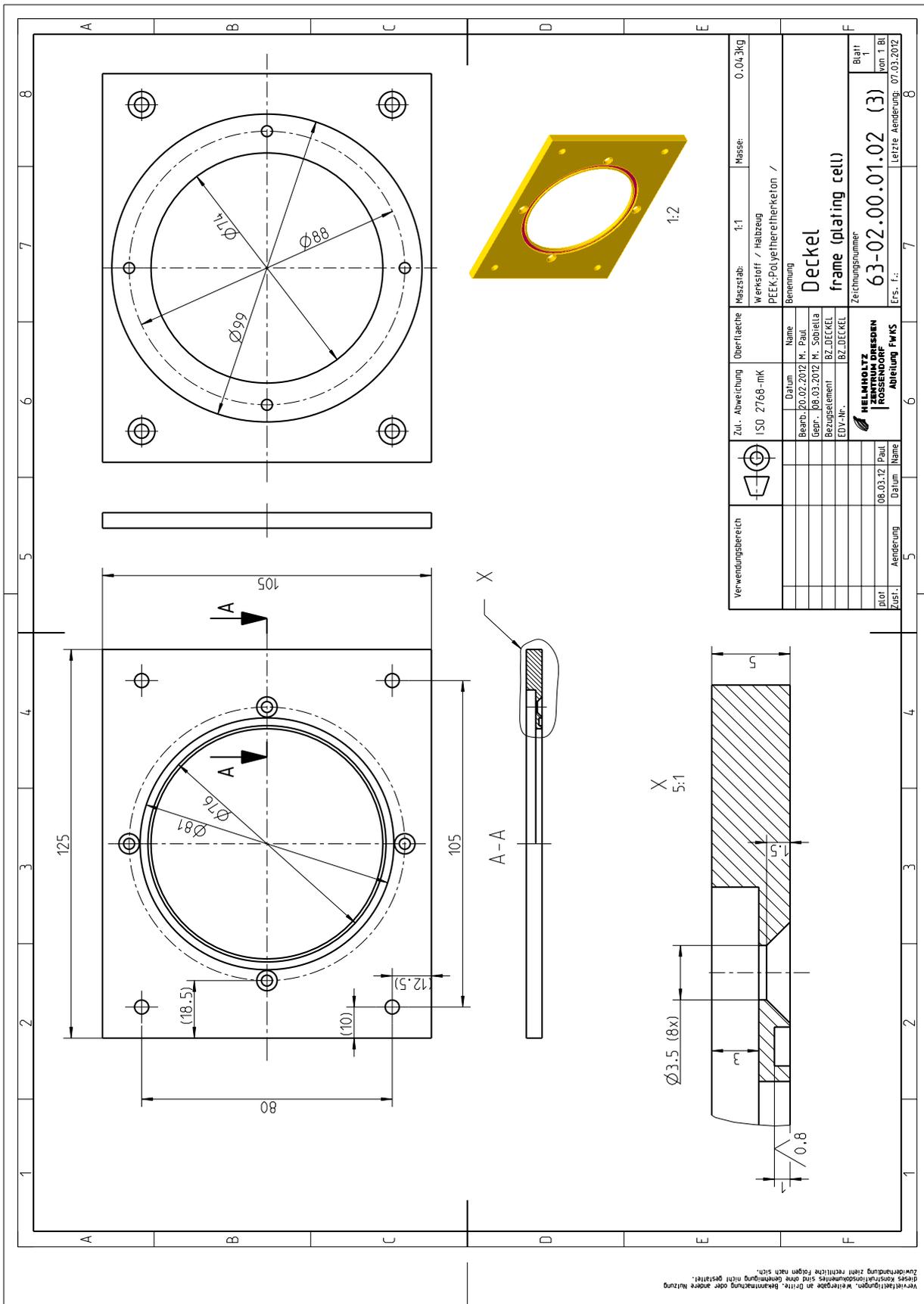


# Anhang

## A.1 Depositionszelle



**Abbildung A.1.1:** Konstruktionszeichnung des Gehäuses der Depositionszelle aus Kapitel 4.1.1 und [Vascon et al., 2011]. Die Zelle zur Abscheidung des Plutoniums wurde aus Polychlortrifluorethylen (PCTFE) gefertigt, die zur Abscheidung des Urans aus Polyetheretherketon (PEEK).



**Abbildung A.1.2:** Konstruktionszeichnung des Deckels der Depositionszelle. Zwischen ihm und dem Zellengehäuse befindet sich der Si-Wafer. Ein O-Ring zwischen beiden stellt sicher, dass die Actinoidenlösung nicht aus der Zelle austritt.



## A.2 Neutronenflugzeitanlagen

Tabelle A.2.1 gibt einen Überblick über eine Auswahl von Neutronenflugzeitanlagen mit ihren charakteristischen Parametern. Der Van-de-Graaff (VdG) des Forschungszentrums Karlsruhe (heute Karlsruher Institut für Technologie, KIT) steht mit seinen Eigenschaften stellvertretend für baugleiche Anlagen (z. B. den VdG des IRMM Geel). Ergänzungen zu dieser Tabelle sind in [Schillebeeckx et al., 2012] aufgeführt.

**Tabelle A.2.1:** Vergleich der wesentlichen Strahlparameter einiger ausgewählter Neutronen-Flugzeitanlagen.

Anlage	CERN n_ToF		LANL	FZK	ORNL	IRMM	n <sub>ELBE</sub>	
	EAR-I	EAR-II					ohne SRF-Injektor	mit SRF-Injektor
Strahlleistung / kW	10	60	0,4	0,4	8	7	5	40
Wiederholrate / s <sup>-1</sup>	0,4	20	2,5 · 10 <sup>5</sup>	500	800	800	2 · 10 <sup>5</sup>	2 · 10 <sup>5</sup>
Impulsladung / nC	≈ 10 <sup>3</sup>	4 · 10 <sup>3</sup>	0,01	≈ 100	≈ 100	0,08	0,08	1,0
Flugstrecke / m	183	20	60	0,8	40	6-400	7-11	7-11
n-Pulslänge / ns	> 7	125	≈ 1	> 4	> 1	> 1	< 0,1	< 0,1
$E_{min}$ / eV	0,1	0,1	1	10 <sup>3</sup>	10	10	10 <sup>4</sup>	10 <sup>4</sup>
$E_{max}$ / eV	3 · 10 <sup>8</sup>	10 <sup>8</sup>	2 · 10 <sup>5</sup>	5 · 10 <sup>6</sup>	4 · 10 <sup>6</sup>	4 · 10 <sup>6</sup>	1 · 10 <sup>7</sup>	1 · 10 <sup>7</sup>
$\Delta E/E$ @ 1 MeV	0,5 %	5 %	≈ 10 %	≈ 10 %	< 1 %	< 2 %	≈ 1 %	≈ 1 %
$\Phi_n$ / n/(cm <sup>2</sup> s)	10 <sup>5</sup>	≈ 10 <sup>7</sup>	≈ 10 <sup>6</sup>	≈ 10 <sup>4</sup>	10 <sup>4</sup>	4 · 10 <sup>4</sup>	2 · 10 <sup>4</sup>	3 · 10 <sup>5</sup>

Die Abkürzungen stehen für:

- die **Experimental Area** (EAR) I und II an der Neutronenflugzeitanlage n\_ToF des Conseil Européen pour la Recherche Nucléaire (CERN),
- das **Neutron Science Center** (NSC) am Los Alamos National Laboratory (LANL),
- die **Oak Ridge Electron Linear Accelerator Pulsed Neutron Source** (ORELA) am **Oak Ridge National Laboratory** (ORNL, außer Betrieb),
- den **Van-de-Graff** (VdG)-Beschleuniger am Forschungszentrum Karlsruhe (FZK),
- die **Geel Electron Linear Accelerator Facility** (GELINA) am Institut für Referenz Materialien and Messungen (IRMM) sowie
- die Neutronenflugzeitanlage am **Elektronen Linearbeschleuniger** für Strahlen hoher Brillanz und niedriger **Emittanz** (*n*ELBE) mit und ohne Supraleitendem **Radiofrequenz** (SRF) Injektor.

## A.3 Spaltfragmentverteilungen mit GEF

Die Kernspaltung stellt eine kollektive Bewegung mit großer Amplitude aller Nukleonen eines Kerns dar, deren Dynamik nicht einfach quantenmechanisch beschrieben werden kann. Die Massen- bzw. Elementverteilung der Spaltfragmente sind Observablen, die in komplexer Weise von der Dynamik des Spaltprozesses abhängen. Bei niedrigen Anregungsenergien muss sich die kollektive Bewegung des Compoundkerns in Spaltrichtung aus der intrinsischen Anregung dynamisch entwickeln. Die intrinsischen Freiheitsgrade können dabei als ein Wärmebad aufgefasst werden, aus dem durch die Viskosität der Kernmaterie eine Kopplung zur Bewegung in Spaltrichtung über den Sattelpunkt entsteht. Diese kollektive Bewegung findet oberhalb einer mehrdimensionalen Potentialenergieoberfläche statt, die den Grundzustand des Kerns, die Spaltbarrieren mit mehreren Maxima und mit wachsender Deformation verschiedene Täler, die Spaltmoden, enthält [Pashkevich, 1971]. Die Gestalt dieser Potentialenergielandschaft setzt sich aus dem makroskopischen Anteil auf Basis des Kerntröpfchenmodells und deformationsabhängigen Schalenkorrekturen der entstehenden Spaltfragmente zusammen. Während durch das Tröpfchenmodell die symmetrische Spaltung energetisch bevorzugt wird, zeigen die Experimente, dass in einem weiten Bereich (Th-Cf) die asymmetrische Spaltung überwiegt. Diese kann durch Schaleneffekte in der Potentialenergieoberfläche beschrieben werden. In der durch Transferreaktionen angeregten Spaltung von Radiumisotopen konnte die Existenz der Spaltmoden eindrucksvoll gezeigt werden [Konecny et al., 1974]. Dort sind die asymmetrische Spaltung und symmetrische Spaltung ungefähr gleich stark. In vielen Experimenten hat sich gezeigt, dass das Verständnis von Massen und kinetischen Energien der Spaltfragmente mehr als nur eine symmetrische und asymmetrische Spaltmode erfordert [Brosa et al., 1986, Knitter et al., 1987, Möller et al., 2001].

Die treibende Kraft für die Spaltung ist nicht direkt vom deformierten Kernpotential abhängig, sondern im Sinne einer stochastischen Bewegung die Ableitung der Entropie nach der kollektiven Spaltkoordinate mal der Temperatur [Gontchar et al., 1993]. H. A. Kramers hat bereits 1940 in einer wichtigen Arbeit über die Brownsche Bewegung und die Sattelpunktmethode zur Bestimmung von Reaktionsraten darauf hingewiesen [Kramers, 1940], dass die kollektive Bewegung des Kerns über den Sattelpunkt zu einer Korrektur der Spaltwahrscheinlichkeit nach [Bohr und Wheeler, 1939] führen kann. Die Spaltwahrscheinlichkeit und damit der Spaltwirkungsquerschnitt hängen vom Erreichen des äußeren Sattelpunkts ab. Die Massen-, Element- und kinetische Energieverteilung der Spaltfrag-

mente dagegen werden von der Dynamik der Spaltbewegung bis zum Zerreipunkt beeinflusst. Die Beschreibung der Spontanspaltung und der neutroneninduzierten Spaltung bei niedrigen Anregungsenergien kann mit der gleichen Potentialenergielandschaft stattfinden. Bei der Spontanspaltung allerdings tunnelt der Kern durch die Spaltbarriere und kommt bevorzugt in einem Tal in der Potentialenergielandschaft wieder hervor. Das heit, es werden die verschiedenen Spaltmoden direkt bevlkert mit einer Wahrscheinlichkeit, die aus der Transmission der verschiedenen Barrieren bestimmt werden kann. Die relative Bevlkerung der verschiedenen Spaltmoden hngt aber sehr viel schwcher von den Schaleneffekten ab, als die partielle Halbwertszeit fr Spontanspaltung vom Grundzustandschaleneffekt abhngt [Schmidt et al., 2014]. Fr die neutroneninduzierte Spaltung bei niedrigen Anregungsenergien hngt die Bevlkerung der verschiedenen Spaltmoden, das heit die Massen- und Elementverteilung der Spaltfragmente, von der relativen Niveaudichte des spaltenden Compoundkerns oberhalb der Potentialenergieoberflche ab.

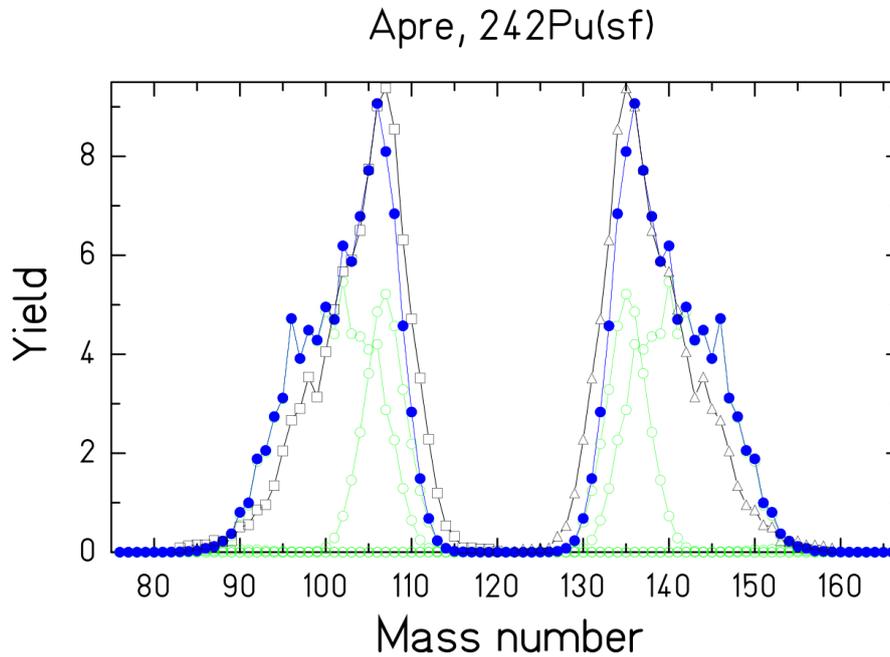
In dieser Arbeit wurden die fr die Simulation der Impulshhenverteilung der Spaltionsationskammern (Abschnitt 4.1.5) bentigten Spaltfragmentverteilungen mit dem Programm „A General Description of Fission Observables“ (im Weiteren GEF) berechnet [Schmidt et al., 2014]. Dieses Programm beschreibt die Spontanspaltung von  $^{242}\text{Pu}$  recht gut, was in Abbildung A.3.1 ersichtlich ist.

Die Ergebnisse dieser Simulationen sind fr die Spontan- und neutroneninduzierte Spaltung in Abbildung A.3.3 noch einmal in Form einer Nuklidkarte dargestellt. Dort sieht man, dass sich die Spaltfragmente aus den beiden unterschiedlichen Spaltsystemen ( $^{242}\text{Pu}$  und  $^{243}\text{Pu}$ ) leicht abseits des Tals der Stabilitt auf der neutronenreichen Seite gruppieren. Kernmassen und -ladungsverteilungen sind sich sehr hnlich, wobei der Anteil an symmetrischer Spaltung fr die neutroneninduzierte Spaltung grer ist. Fr die Spontanspaltung von  $^{242}\text{Pu}$  dominiert die asymmetrische Spaltung. Fr die einfallenden Neutronenenergien der neutroneninduzierten Spaltung wurde das gemessene  $n\text{ELBE}$ -Spektrum aus Abbildung 3.0.4 verwendet.

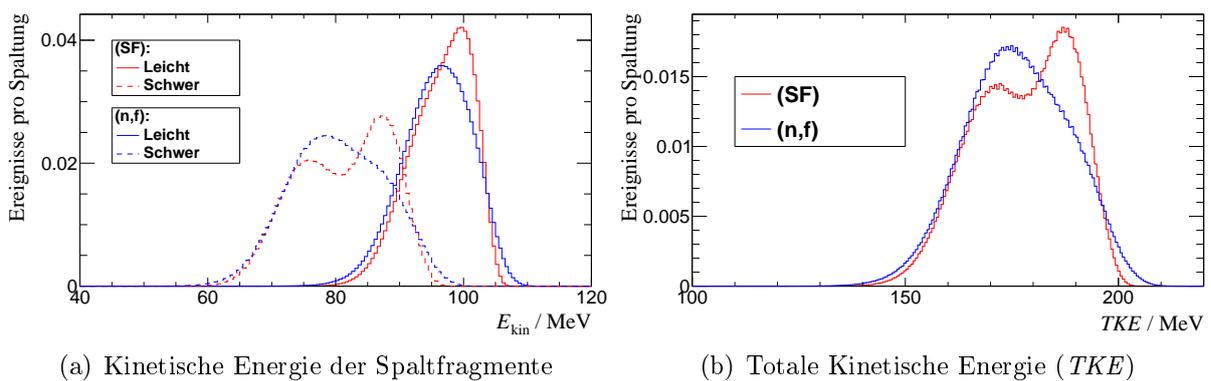
Aus der Kombination von relativistischer Impuls- und Energieerhaltung lsst sich aus der ebenfalls von GEF berechneten Totalen Kinetischen Energie ( $TKE$ ) und den Massen  $A_i$  der Spaltfragmente  $i$  ihre kinetische Energie  $T_i$  zu:

$$T_1 = \frac{TKE(TKE + 2A_2)}{2(TKE + A_1 + A_2)} \quad \text{und} \quad T_2 = \frac{TKE(TKE + 2A_1)}{2(TKE + A_1 + A_2)} \quad (\text{A.3.1})$$

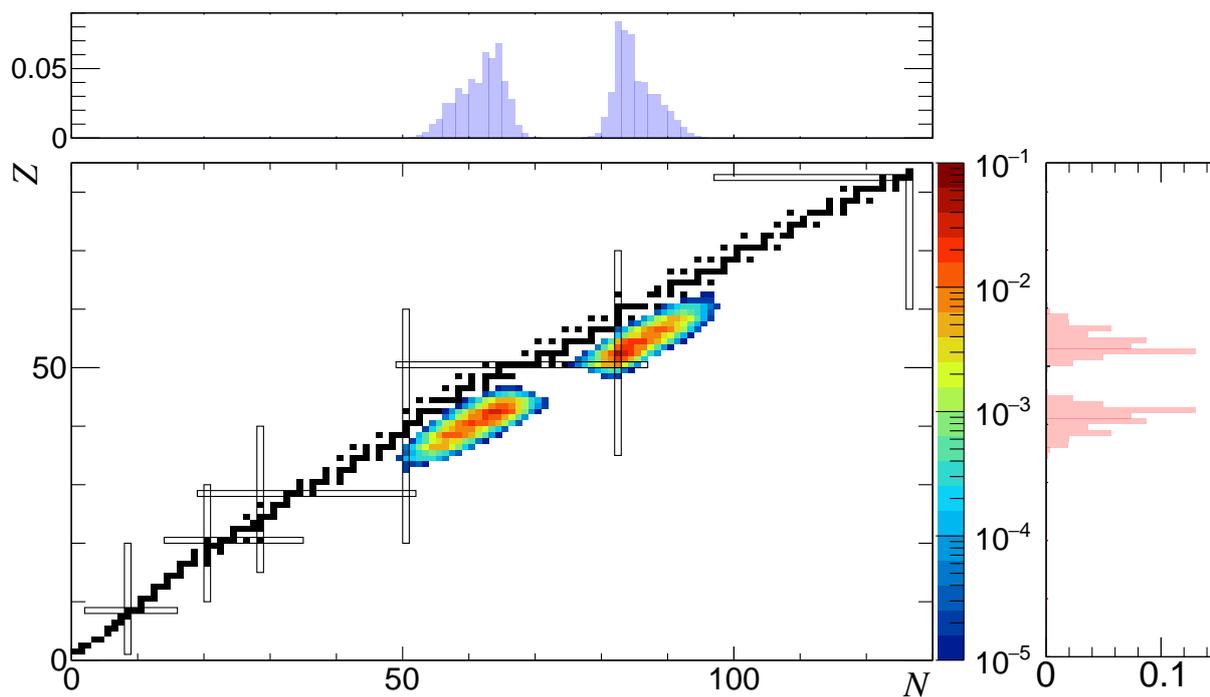
bestimmen. Die daraus resultierenden Verteilungen der kinetischen Energie der Spaltfragmente sind in Abbildung A.3.2 (a) abgebildet.



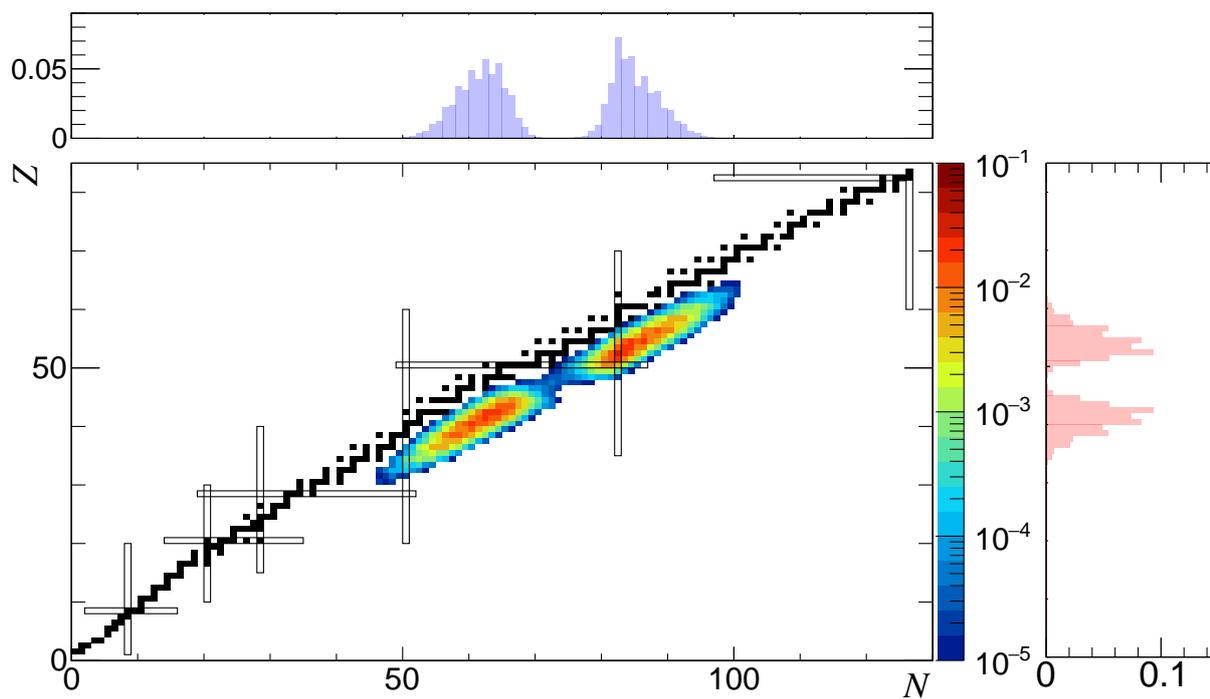
**Abbildung A.3.1:** Massenverteilung vor Neutronenemission der Spaltfragmente aus der Spontanspaltung von  $^{242}\text{Pu}$ . Die experimentellen Daten (schwarze Dreiecke und Quadrate) stammen aus der Arbeit von [Demattè et al.](#) aus dem Jahr 1997. Die GEF-Ergebnisse sind als grüne und blaue Symbole dargestellt. Die Ausbeuten sind auf 200 % normiert. Die Darstellung wurde aus [[Schmidt et al., 2014](#)] entnommen.



**Abbildung A.3.2:** Kinetische Energie der Spaltfragmente und Totale Kinetische Energie ( $TKE$ ) bei der neutroneninduzierten Spaltung ((n,f), blau) und Spontanspaltung ((SF), rot) von  $^{242}\text{Pu}$ .



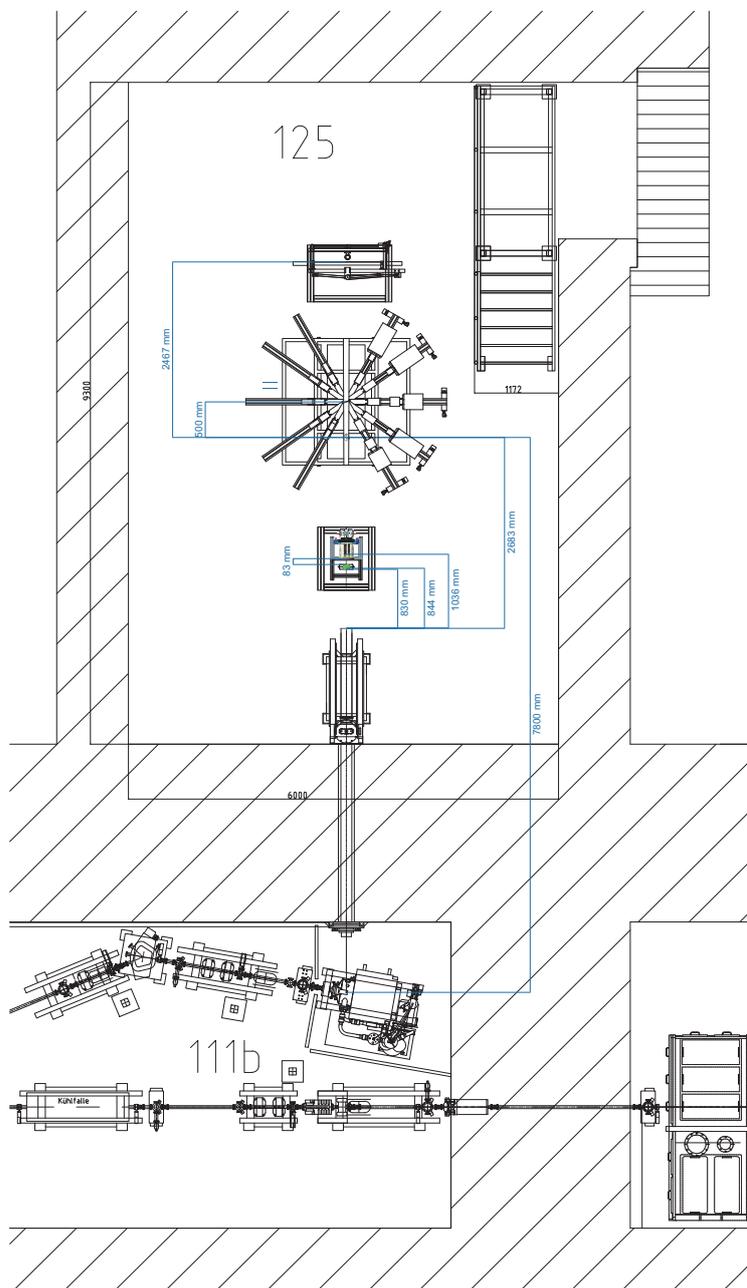
(a) Spontanspaltung



(b) Neutroneninduzierte Spaltung

**Abbildung A.3.3:** Mit dem GEF-Code simulierte Spaltfragmentverteilungen aus der Spontan- und neutroneninduzierten Spaltung von  $^{242}\text{Pu}$ .

## A.4 Experimenteller Aufbau



**Abbildung A.4.1:** Maßstabsgetreue Darstellung des experimentellen Aufbaus der Strahlzeit vom November 2014. Gezeigt sind die wesentlichen Bestandteile in den Räumen 111b und 125 des ELBE-Beschleunigers. Die verwendeten Spaltkammern sind auf ihrem Gestell farbig abgesetzt. Der grau-weiße Messpunkt in der Mitte von Raum 125 zeigt den im Text erwähnten Bezugspunkt für die Entfernungsmessung aller Detektoren zur Photoneutronenquelle.

### A.5 Aufbau der Datenaufnahme/-verarbeitung

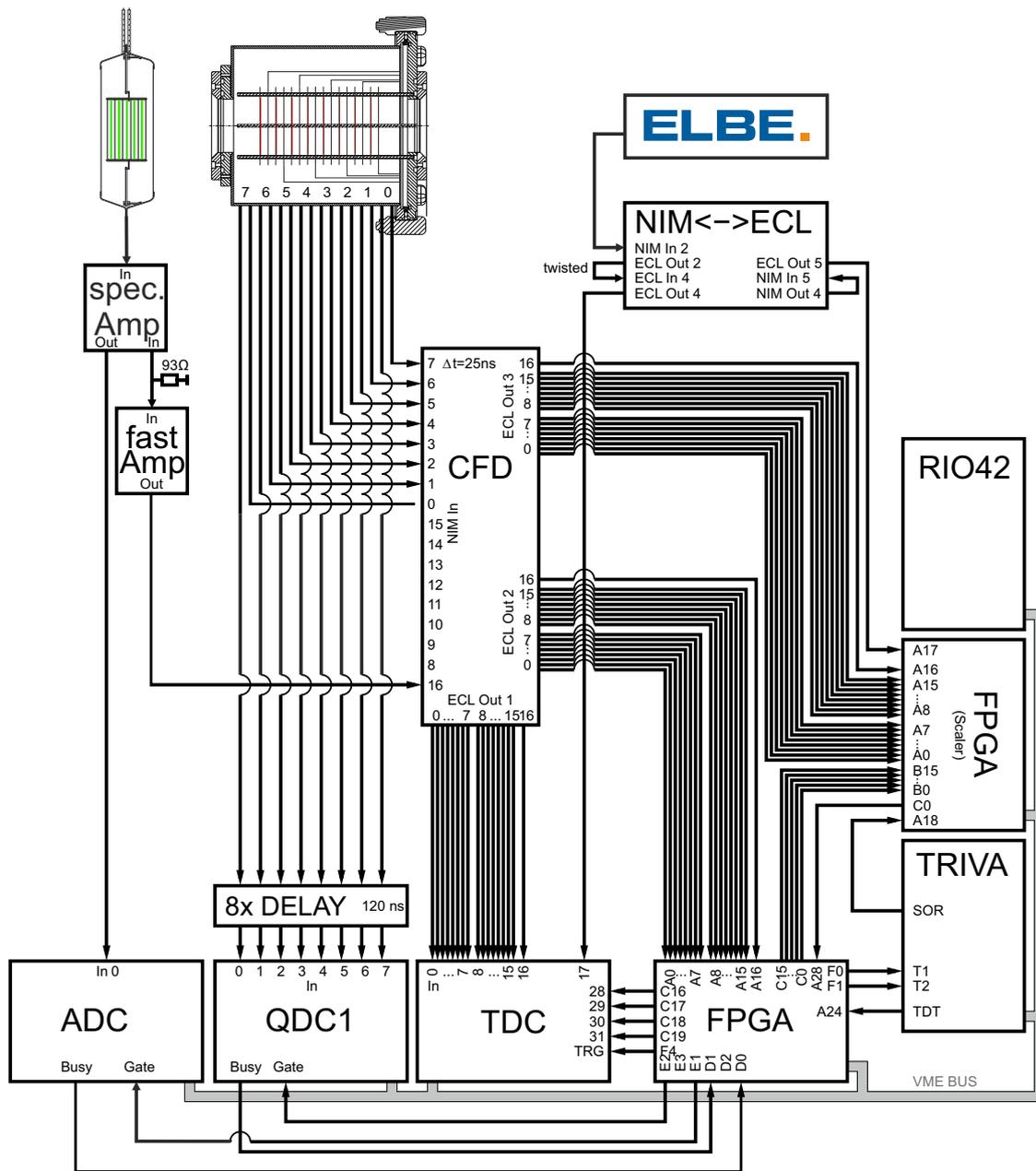
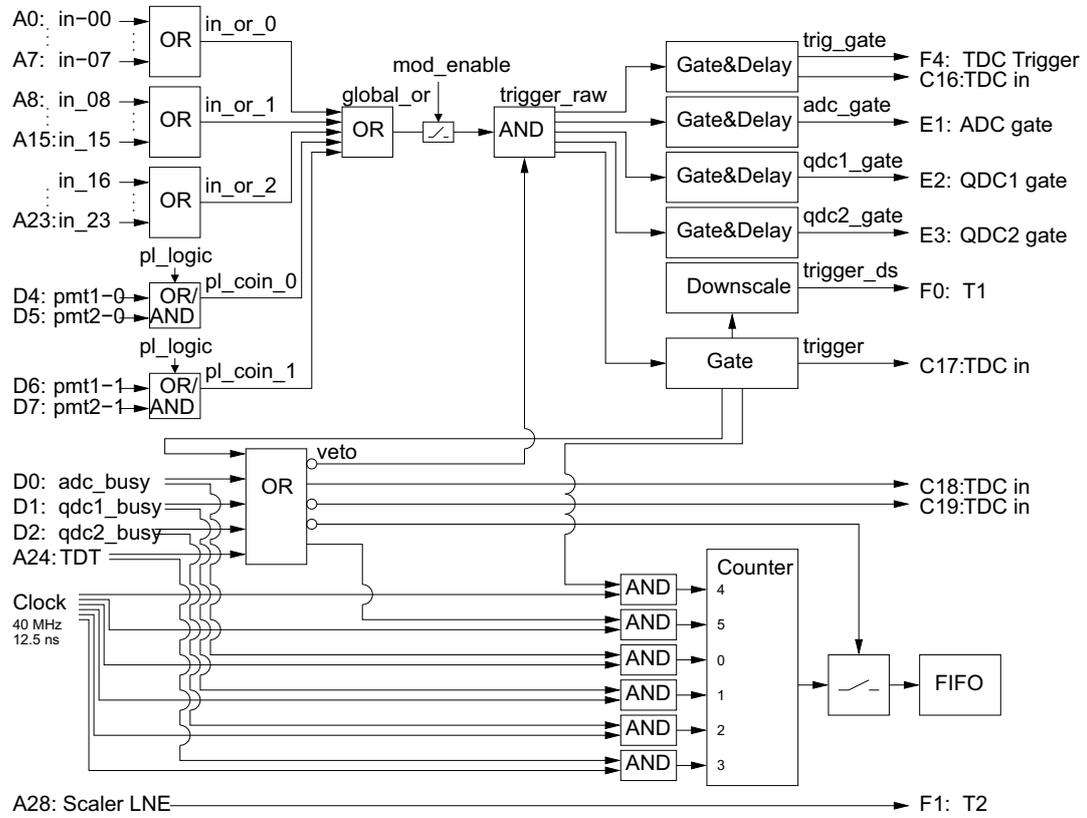


Abbildung A.5.1: Aufbau der Datenaufnahme.

### FPGA Trigger-Logik:



### FPGA Scaler-Logik:

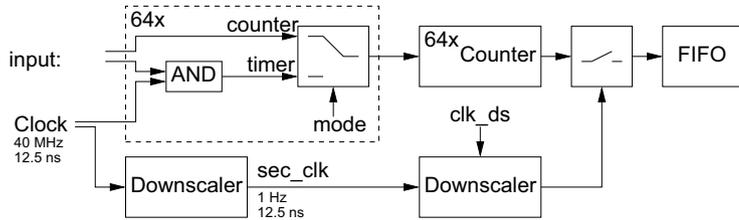


Abbildung A.5.2: FPGA-Logik des Experiments.

## A.5.1 Verwendete Elektronik

Tabelle A.5.1: Verwendete Elektronik Module.

Modul	Produkt-Nr.	Bezeichnung	Hersteller
TDC	V1290A	32-ch Multi-Hit/Multi-Event TDC	CAEN <sup>1</sup>
QDC	V965A	8 Ch Dual Range Multievent QDC	CAEN <sup>1</sup>
ADC	V1785	8 Ch Dual Range Multievent Peak Sensing ADC	CAEN <sup>1</sup>
FPGA, Scaler	V1495	General Purpose VME Board	CAEN <sup>1</sup>
spec. Amp	671	Spectroscopic Amplifier	Ortec <sup>2</sup>
fast Amp	579	Fast Filter Amplifier	Ortec <sup>2</sup>
CFD		Constant Fraction Discriminator	HZDR <sup>3</sup>
NIM↔ ECL	PS726	NIM/TTL/ECL Logic Level Translator	Phillips <sup>4</sup>
TRIVA	TRIVA3	Trigger Synchronisations Modul	GSI <sup>5</sup>
RIO42	RIO4-8072	Freescale-Based 6U VME Single Board Computer	CES <sup>6</sup>

<sup>1</sup> CAEN S.p.A | Via della Vetraria 11, 55049 Viareggio Lucca, Italy | [www.caen.it](http://www.caen.it)

<sup>2</sup> Ortec | c/o AMETEK GmbH | Rudolf-Diesel-Straße 16, 40670 Meerbusch, Germany | [www.ortec-online.com](http://www.ortec-online.com)

<sup>3</sup> Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf | Inhouse Entwicklung | Klaus Heidel

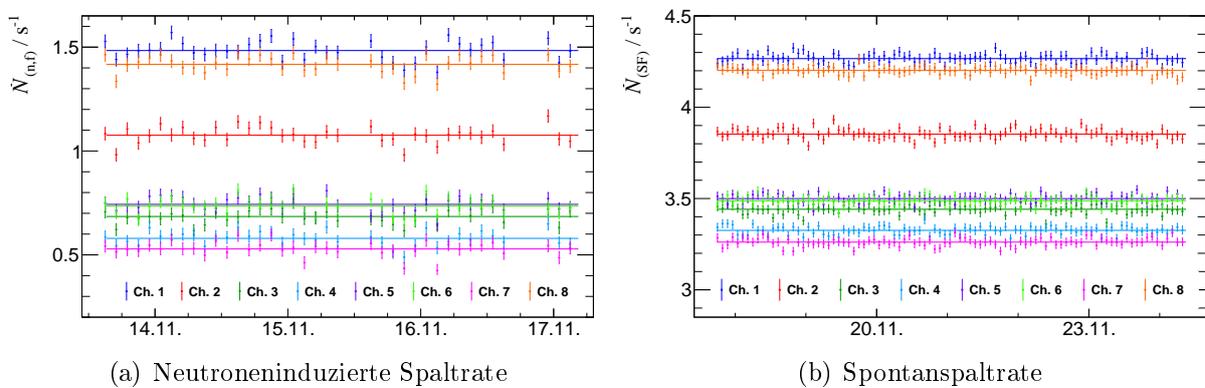
<sup>4</sup> Phillips Scientific | c/o Canberra GmbH | Walter-Flex-Str. 66, 65428 Rüsselsheim, Germany | [www.phillipsscscientific.com](http://www.phillipsscscientific.com)

<sup>5</sup> GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung GmbH | Planckstraße 1, 64291 Darmstadt, Germany | [www.gsi.de](http://www.gsi.de)

<sup>6</sup> Creative Electronic Systems | Avenue Eugene-Lance 38, 1212 Grand-Lancy 1, Geneva, Switzerland | [www.ces-swap.com](http://www.ces-swap.com)

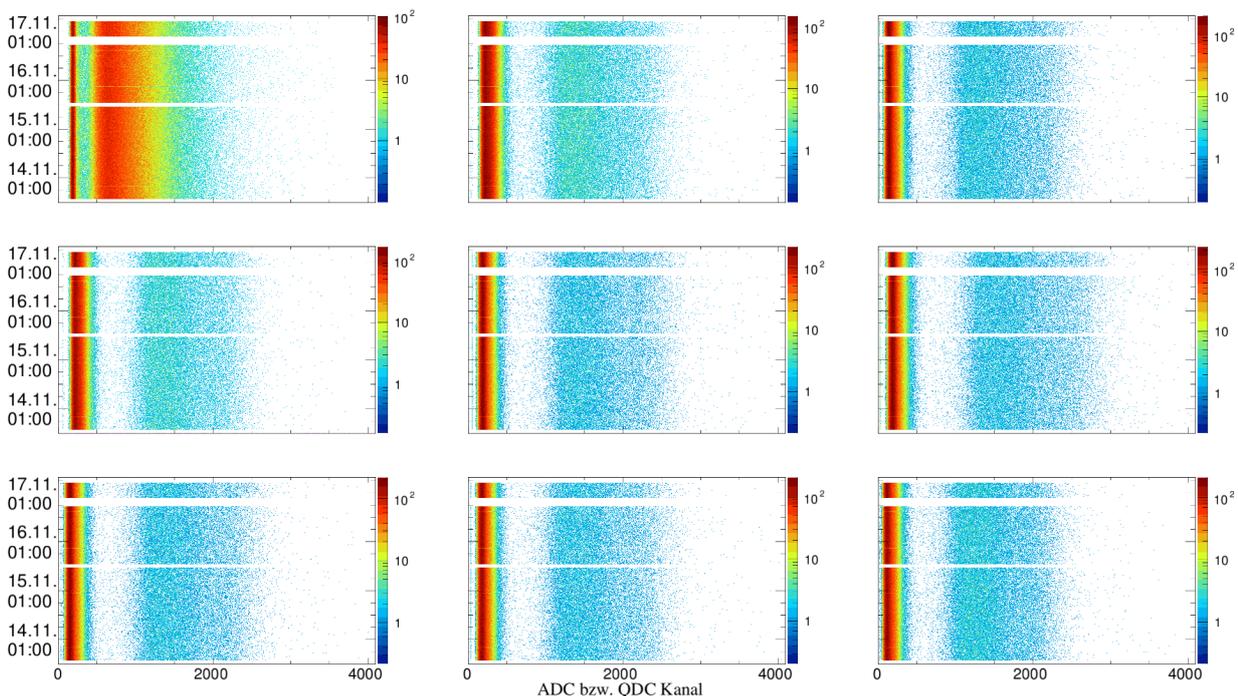
## A.6 Stabilität der Datenaufnahme

In Ergänzung zu Abbildung 5.4.5 und 5.4.6 aus Kapitel 5.4 sind in Abbildung A.6.2 Flugzeit und Impulshöhe bzw. Ladung für die H19 und für alle Kanäle der PuFC zeitlich aufgelöst abgebildet. Die Darstellung belegt die Funktionalität aller Kanäle während des Experiments. Weiterhin kann im Falle der Ladungs- und Impulshöhenspektren die Stabilität der Diskriminatorschwelle überprüft werden. Anhand der zeitlich aufgelösten Flugzeitspektren konnten Fehlfunktionen des TDCs ausgeschlossen werden. In einem früheren *n*ELBE-Experiment konnte eine Verschiebung der Flugzeitspektren beobachtet werden, die auf eine Verschiebung eines Bits im CAEN-Modul V1290A zurückgeführt werden konnte.

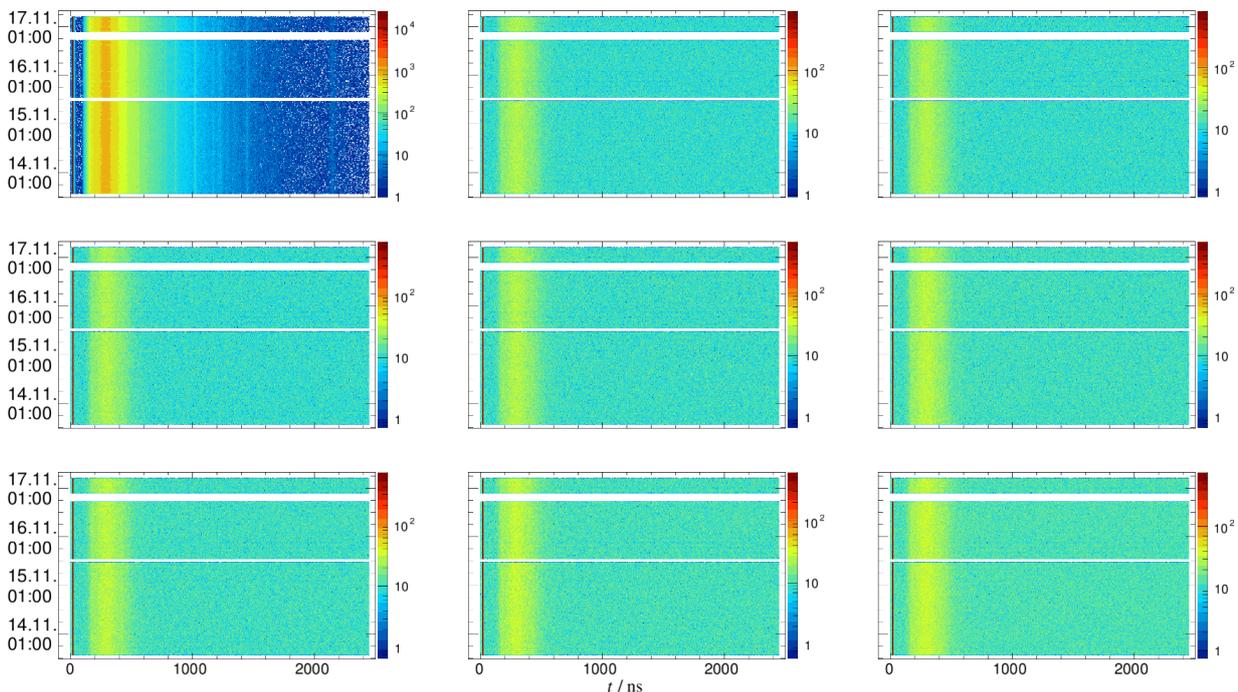


**Abbildung A.6.1:** Konstanz der Spaltraten für die neutroneninduzierte Spaltung (links) und die Spontanspaltung (rechts) von  $^{242}\text{Pu}$ . Jeder Messpunkt steht für die mittlere Spaltrate in zwei Stunden.

Abbildung A.6.1 zeigt die aus diesen Spektren abgeleiteten Spaltraten für die neutroneninduzierte Spaltung (a) und die Spontanspaltung (b) jeweils für einen Integrationszeitraum von 2 h. Innerhalb ihrer statistischen Unsicherheiten sind diese konstant. Für die neutroneninduzierten Spaltraten ist das zusätzlich eine Bestätigung der Konstanz des Neutronenflusses und auch der Auswertemethode, da die in Kapitel 5.4.2 beschriebene Prozedur für jedes Zeitintervall einzeln angewendet wurde.



(a) Ladung und Impulshöhe



(b) Flugzeit

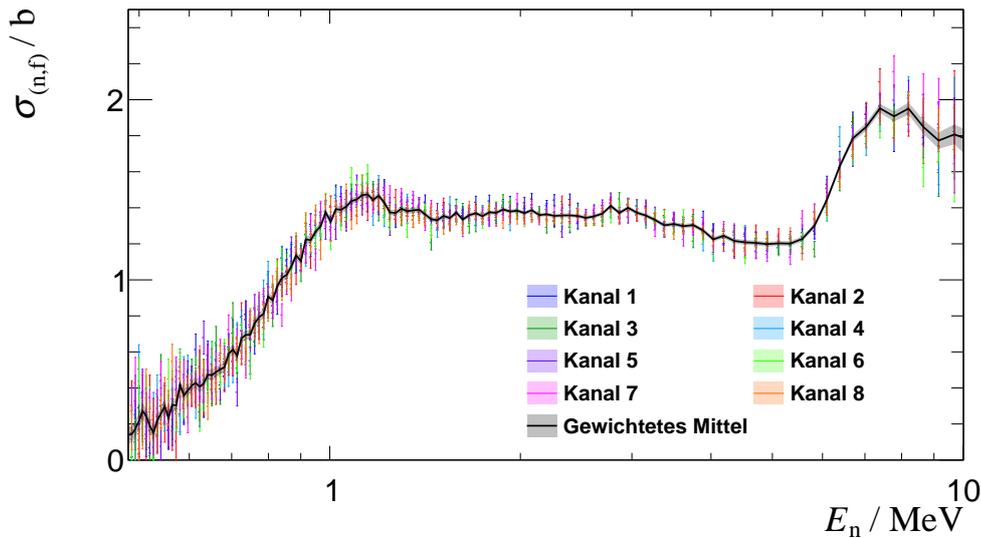
**Abbildung A.6.2:** Stabilität der Verstärkung aller Spaltkammerkanäle (H19 jeweils oben links, PuFC restliche) während des gesamten Experiments. Erklärungen dazu in Kapitel 5.4 und in Abbildung 5.4.5 und 5.4.6.

## A.7 Konsistenzbetrachtung der Querschnittsbestimmung

Die Herleitung zu Beginn von Kapitel 5.4.2 behandelt die Vielschichtionisationskammern am Ende so, als bestünden sie nur aus einem einzigen Deposit. Natürlich wird die Neutronenstreuung für jede Schicht innerhalb der Spaltkammer individuell korrigiert und auch die Flugstrecke dorthin angepasst, jedoch werden die detektierten Spaltreignisse summiert und im Anschluss auch durch die Summe der Targetatome geteilt. Alternativ soll im Folgenden jedes Deposit als eigenständig betrachtet und für jeden Kanal der Plutoniumspaltkammer ein Wirkungsquerschnitt berechnet werden. So kann überprüft werden, ob die Deposits vergleichbare Eigenschaften haben und zu denselben Ergebnissen führen. Das gewichtete Mittel aller acht Wirkungsquerschnitte sollte im Rahmen der Unsicherheit dann dasselbe Ergebnis liefern (siehe Abbildung 5.5.2). Ausgangspunkt ist Formel (5.4.16), für die nun aber nur über ein einzelnes Deposit summiert wird. Es folgt für den absoluten Wirkungsquerschnitt des  $i$ -ten Pu-Deposits:

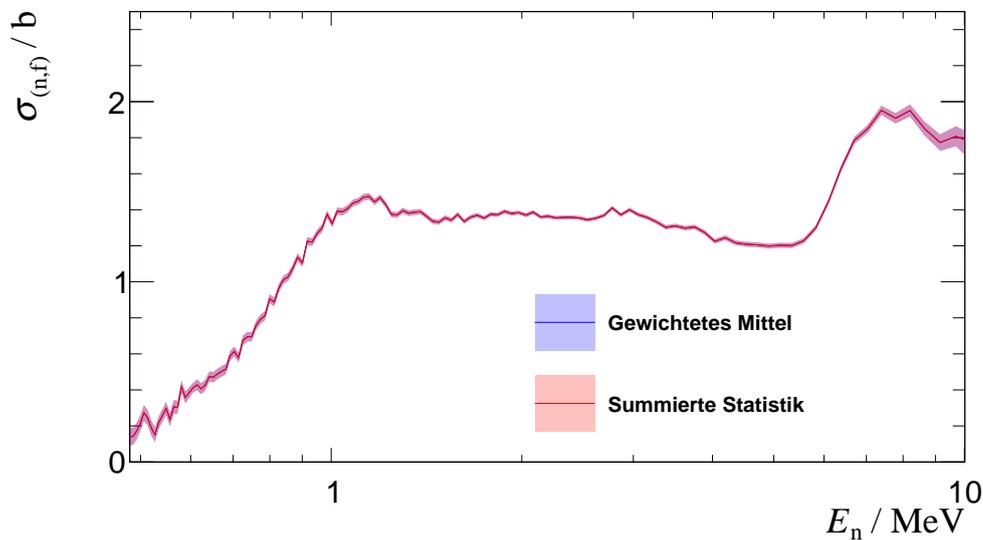
$$\sigma_{(n,f)}^{\text{PuFC}_i} = \lambda \gamma F \left( \left( \frac{C \dot{N}_{(n,f)}^{\text{det}}}{\alpha_{(\text{SF})} \dot{N}_{(\text{SF})}^{\text{det}}} \right)^{\text{PuFC}_i} / \left( \frac{\langle C \rangle^{\text{H19}} \dot{N}_{(n,f)}^{\text{det}}}{\varepsilon n_A} \right)^{\text{H19}} \right) \sigma_{(n,f)}^{\text{H19}} \quad (\text{A.7.1})$$

Die Ergebnisse der nach Gleichung (A.7.1) ermittelten Wirkungsquerschnitte sind in Abbildung A.7.1 zusammen mit ihrem gewichteten Mittel dargestellt.



**Abbildung A.7.1:** Vergleich der neutroneninduzierten Spaltquerschnitte aller Plutoniumdeposits zusammen mit ihrem gewichteten Mittel.

Gewichtet wurde über die Anzahl der Pu-Targetatome im jeweiligen Deposit im Verhältnis zur Gesamtanzahl der spaltbaren Pu-Atome der gesamten Kammer.



**Abbildung A.7.2:** Vergleich der neutroneninduzierten Spaltquerschnitte bestimmt über das gewichtete Mittel aller PuFC-Kanäle (blau) und aufsummierter Statistik (rot).

Deutlich erkennbar ist die sehr gute Übereinstimmung aller Deposits untereinander. Abweichungen untereinander sind innerhalb der statistischen Fluktuationen nicht signifikant. Der Vergleich zwischen dem gewichteten Mittel und dem Ergebnis aus Kapitel 5.4.2 (abgebildet in Abb. A.7.2) zeigt die erwartete Übereinstimmung zwischen beiden Auswertemethoden.



# Literaturverzeichnis

- acatech. *Partitionierung und Transmutation: Forschung, Entwicklung, Gesellschaftliche Implikationen*. acatech STUDIE, Deutsche Akademie der Technikwissenschaften (2013).
- acatech. *Partitionierung und Transmutation: Chancen und Risiken in Forschung und Anwendung*. acatech POSITION, Deutsche Akademie der Technikwissenschaften (2014).
- J. Adamczewski-Musch, M. Al-Turany, D. Bertini, H. G. Essel und S. Linev. *The Go4 Analysis Framework*, Version 5. GSI, Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH, Planckstraße 1, D-64291 Darmstadt, Germany (2015).  
<http://web-docs.gsi.de/~go4/go4V05/manuals/Go4introV5.pdf>
- A. Al-Adili, F.-J. Hambsch, S. Oberstedt, S. Pomp und S. Zeynalov. Comparison of digital and analogue data acquisition systems for nuclear spectroscopy. *Nucl. Instr. and Meth. A* **624**, 684–690 (2010).  
DOI: [10.1016/j.nima.2010.09.126](https://doi.org/10.1016/j.nima.2010.09.126)
- I. Alkhazov, E. Ganza, L. Drapchinskij, V. Dushin, S. Kovalenko, O. Kostochkin, K. Petzhak, A. Fomichev, V. Shpakov, R. Arlt, W. Wagner, M. Josch, G. Musiol, H.-G. Ortlepp und G. Pausch. Absolute measurements of the fission cross-sections for some heavy isotopes by the neutrons with energies 2.6, 8.4, 14.7 MeV. In *Proc. of the 3<sup>rd</sup> All-Union Conference on the Neutron Radiation Metrology at Reactors and Accelerators, Moscow*, Band 2, Seite 201 (1983).
- J. Allison, S. Agostinelli, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce, M. Asai, D. Axen, S. Banerjee, G. Barrand, F. Behner, L. Bellagamba, J. Boudreau, L. Broglia, A. Brunengo, H. Burkhardt, S. Chauvie, J. Chuma, R. Chytracsek, G. Cooperman et al. Geant 4 – a simulation toolkit. *Nucl. Instr. and Meth. A* **506**, 250–303 (2003).  
DOI: [10.1016/S0168-9002\(03\)01368-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(03)01368-8)

- E. Altstadt, C. Beckert, H. Freiesleben, V. Galindo, E. Grosse, A. Junghans, J. Klug, B. Naumann, S. Schneider, R. Schlenk, A. Wagner und F.-P. Weiss. A photo-neutron source for time-of-flight measurements at the radiation source ELBE. *Ann. Nucl. Energy* **34**, 36–50 (2007).  
DOI: [10.1016/j.anucene.2006.11.005](https://doi.org/10.1016/j.anucene.2006.11.005)
- R. Arlt, W. Grimm, M. Josch, G. Musiol, H. G. Ortlepp, G. Pausch, R. Teichner, W. Wagner, I. D. Alkhazov, L. V. Drapchinsky, V. Dushin, S. S. Kovalenko, O. I. Kostochkin, K. A. Petrzhak und V. I. Shpakov. The Application of a Time-Correlated Associated Particle Method for Absolute Cross-Section Measurements of Heavy Nuclides. In J. L. Fowler, C. H. Johnson und C. D. Bowman (Editoren), *Proceedings of the International Conference on Nuclear Cross Sections for Technology*, Band 13 (1980).  
<https://www.gpo.gov/fdsys/pkg/GOVPUB-C13-004fdeb4921926ed5e1b9db45d80c046/content-detail.html>
- R. Arlt, W. Meiling, G. Musiol, H.-G. Ortlepp, R. Teichner, W. Wagner, I. Alkhazov, O. Kostochkin, S. Kovalenko, K. Petrzhak und V. Shpakov. Absolute determination of fission cross sections of U-233, U-235, U-238, Np-237, Pu-239 and Pu-242 at 14.7 MeV. *Kernenergie* **24**, 48 (1981).
- G. Auchampaugh, J. Farrell und D. Bergen. Neutron-induced fission cross sections of  $^{242}\text{Pu}$  and  $^{244}\text{Pu}$ . *Nucl. Phys. A* **171**, 31–43 (1971).  
DOI: [10.1016/0375-9474\(71\)90360-5](https://doi.org/10.1016/0375-9474(71)90360-5)
- S. Badikov, C. Zhenpeng, A. Carlson, E. Gai, G. Hale, F.-J. Hamsch, H. Hofmann, T. Kawano, N. Larson, V. Pronyaev, D. Smith, S.-Y. Oh, S. Tagesen und H. Vonach. *International Evaluation of Neutron Cross-Section Standards*. Technical Report **07-00494**, International Atomic Energy Agency, Wagramer Straße 5, P.O. Box 100, 1400 Vienna, Austria (2007).  
[http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/Pub1291\\_web.pdf](http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/Pub1291_web.pdf)
- M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, X. Mougeot, E. Browne, V. Chechev, N. Kuzmenko, F. Kondev, A. Luca, M. Galán, A. Nichols, A. Arinc und X. Huang. *Table of Radionuclides*, Band 5 von *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France (2010).  
[http://www.bipm.org/utils/common/pdf/monographieRI/Monographie\\_BIPM-5\\_Tables\\_Vol5.pdf](http://www.bipm.org/utils/common/pdf/monographieRI/Monographie_BIPM-5_Tables_Vol5.pdf)

- J. Behrens, R. Newbury und W. Magana. Measurements of the Neutron-Induced Fission Cross Sections of  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ , and  $^{244}\text{Pu}$  Relative to  $^{235}\text{U}$  from 0.1 to 30 MeV. *Nucl. Sci. Eng.* **66**, 433–441 (1978).  
[http://www.ans.org/pubs/journals/nse/a\\_27227](http://www.ans.org/pubs/journals/nse/a_27227)
- D. Bergen und R. Fullwood. Neutron-induced fission cross section of  $^{242}\text{Pu}$ . *Nucl. Phys. A* **163**, 577–582 (1971).  
DOI: [10.1016/0375-9474\(71\)90510-0](https://doi.org/10.1016/0375-9474(71)90510-0)
- R. Beyer. *Inelastische Streuung schneller Neutronen an  $^{56}\text{Fe}$* . Dissertation, Technische Universität Dresden (2014).  
<http://www.hzdr.de/db/Cms?p0id=29864>
- R. Beyer, E. Birgersson, Z. Elekes, A. Ferrari, E. Grosse, R. Hannaske, A. Junghans, T. Kögler, R. Massarczyk, A. Matić, R. Nolte, R. Schwengner und A. Wagner. Characterization of the neutron beam at nELBE. *Nucl. Instr. and Meth. A* **723**, 151–162 (2013).  
DOI: [10.1016/j.nima.2013.05.010](https://doi.org/10.1016/j.nima.2013.05.010)
- R. Beyer, E. Grosse, K. Heidel, J. Hutsch, A. R. Junghans, J. Klug, D. Légrády, R. Nolte, S. Röttger, M. Sobiella und A. Wagner. Proton-recoil detectors for time-of-flight measurements of neutrons with kinetic energies from some tens of keV to a few MeV. *Nucl. Instr. and Meth. A* **575**, 449–455 (2007).  
DOI: [10.1016/j.nima.2007.02.096](https://doi.org/10.1016/j.nima.2007.02.096)
- S. Bjørnholm und V. Strutinsky. Intermediate states in fission. *Nucl. Phys. A* **136**, 1–24 (1969).  
DOI: [10.1016/0375-9474\(69\)90035-9](https://doi.org/10.1016/0375-9474(69)90035-9)
- V. Blobel und E. Lohrmann. *Statistische und numerische Methoden der Datenanalyse*. Online-Ausgabe, Institut für Experimentalphysik, Universität Hamburg, Luruper Chaussee 149, D – 22 761 Hamburg und Deutsches Elektronensynchrotron Desy, Notkestraße 85, D – 22 607 Hamburg (2012).  
<http://www.desy.de/~blobel/eBuch.pdf>
- N. Bohr. Neutron Capture and Nuclear Constitution. *Nature* **137**, 344–348 (1936).  
DOI: [10.1038/137344a0](https://doi.org/10.1038/137344a0)

- N. Bohr und J. A. Wheeler. The Mechanism of Nuclear Fission. *Phys. Rev.* **56**, 426–450 (1939).  
DOI: [10.1103/physrev.56.426](https://doi.org/10.1103/physrev.56.426)
- T. E. Bortner, G. S. Hurst und W. G. Stone. Drift Velocities of Electrons in Some Commonly Used Counting Gases. *Rev. Sci. Instrum.* **28**, 103–108 (1957).  
DOI: [10.1063/1.1715825](https://doi.org/10.1063/1.1715825)
- U. Brosa, S. Grossmann und A. Müller. Four Channels in the Fission of  $^{252}\text{Cf}$ . *Z. Naturforsch A* **41** (1986).  
DOI: [10.1515/zna-1986-1201](https://doi.org/10.1515/zna-1986-1201)
- R. Brun und F. Rademakers. ROOT — An object oriented data analysis framework. *Nucl. Instr. and Meth. A* **389**, 81–86 (1997).  
DOI: [10.1016/S0168-9002\(97\)00048-X](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(97)00048-X)
- C. Budtz-Jørgensen, H. H. Knitter und G. Bortels. Assaying of targets for nuclear measurements with a gridded ionization chamber. *Nucl. Instr. and Meth. A* **236**, 630–640 (1985).  
DOI: [10.1016/0168-9002\(85\)90972-6](https://doi.org/10.1016/0168-9002(85)90972-6)
- A. Buffler (Editor). *2<sup>nd</sup> International Workshop on Fast Neutron Detectors and Applications (FNDA2011)*, *J. Instrum.* **7** (2012).  
<http://iopscience.iop.org/1748-0221/focus/extra.proc19>
- A. Butler. Fission Cross Section of Plutonium-242. *Phys. Rev.* **117**, 1305–1306 (1960).  
DOI: [10.1103/PhysRev.117.1305](https://doi.org/10.1103/PhysRev.117.1305)
- M. Cancé und G. Grenier. Mesures Absolues de  $^{240}\text{Pu}(n,f)$ ,  $^{242}\text{Pu}(n,f)$  et  $^{237}\text{Np}(n,f)$  A L'Energie Incident de 2,5 MeV. In *Nuclear Data for Science and Technology - Proceedings of the International Conference Antwerp 6–10 September 1982*, Seite 51–54. Springer Science (1983).  
[http://dx.doi.org/10.1007/978-94-009-7099-1\\_10](http://dx.doi.org/10.1007/978-94-009-7099-1_10)
- R. Capote, M. Herman, P. Obložinský, P. Young, S. Goriely, T. Belgia, A. Ignatyuk, A. Koning, S. Hilaire, V. Plujko, M. Avrigeanu, O. Bersillon, M. Chadwick, T. Fukahori, Z. Ge, Y. Han, S. Kailas, J. Kopecky, V. Maslov, G. Reffo et al. RIPL – Reference Input Parameter Library for Calculation of Nuclear Reactions and Nuclear Data Evaluations. *Nucl. Data Sheets* **110**, 3107–3214 (2009).  
DOI: [10.1016/j.nds.2009.10.004](https://doi.org/10.1016/j.nds.2009.10.004)

- G. W. Carlson. The effect of fragment anisotropy on fission-chamber efficiency. *Nucl. Instr. and Meth.* **119**, 97–100 (1974).  
DOI: [10.1016/0029-554X\(74\)90736-8](https://doi.org/10.1016/0029-554X(74)90736-8)
- J. Chadwick. Possible Existence of a Neutron. *Nature* **192**, 312 (1932).  
<http://www.nature.com/physics/looking-back/chadwick/chadwick.pdf>
- 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 et al. ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data. *Nucl. Data Sheets* **112**, 2887–2996 (2011).  
DOI: [10.1016/j.nds.2011.11.002](https://doi.org/10.1016/j.nds.2011.11.002)
- R. L. Chase. Pulse Timing System for Use with Gamma Rays on Ge(Li) Detectors. *Rev. Sci. Instrum.* **39**, 1318–1326 (1968).  
DOI: [10.1063/1.1683660](https://doi.org/10.1063/1.1683660)
- V. P. Chechev.  $^{242}\text{Pu}$  - Comments on evaluation of decay data by V. P. Chechev. Laboratoire National Henri Becquerel, C.E.A. Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France (2009).  
[http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/Nuclides/Pu-242\\_com.pdf](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Pu-242_com.pdf)
- S. Chiba und D. L. Smith. A Suggested Procedure for Resolving an Anomaly in Least-Squares Data Analysis Known as “Peelle’s Pertinent Puzzle” and the General Implications for Nuclear Data Evaluation. Nuclear Data and Measurement Report ANL/NDM-121, Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois 60439, USA (1991).  
<http://www.ne.anl.gov/capabilities/nd/reports/ANLNDM-121.pdf>
- Z. Cho und R. Chase. Comparative study of the timing techniques currently employed with Ge detectors. *Nucl. Instr. and Meth.* **98**, 335–347 (1972).  
DOI: [10.1016/0029-554x\(72\)90115-2](https://doi.org/10.1016/0029-554x(72)90115-2)
- S. Chu, R. Firestone und L. Ekström. *Table of Radioactive Isotopes* (2004).  
<http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/nucSearch.asp>
- W. Churchill. Fifty Years Hence. *Strand Magazine* (1931).
- S. Cohen, F. Plasil und W. J. Swiatecki. Equilibrium configurations of rotating charged or gravitating liquid masses with surface tension. II. *Ann. of Phys.* **82**, 557–596 (1974).  
DOI: [10.1016/0003-4916\(74\)90126-2](https://doi.org/10.1016/0003-4916(74)90126-2)

- L. Demattè, C. Wagemans, R. Barthélémy, P. D'hondt und A. Deruytter. Fragments' mass and energy characteristics in the spontaneous fission of  $^{236}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ , and  $^{244}\text{Pu}$ . *Nucl. Phys. A* **617**, 331–346 (1997).  
DOI: [10.1016/S0375-9474\(97\)00032-8](https://doi.org/10.1016/S0375-9474(97)00032-8)
- Digia. *Qt – a full development framework* (2013).  
<http://qt.digia.com/product/>
- P. Drexler. Aufbau eines Zeitzweiges für die neue TAPS-Elektronik. Diplomarbeit, Justus-Liebig-Universität Gießen (1998).
- T. v. Egidy und D. Bucurescu. Systematics of nuclear level density parameters. *Phys. Rev. C* **72**, 044311 (2005).  
DOI: [10.1103/physrevc.72.044311](https://doi.org/10.1103/physrevc.72.044311)
- M. Erhard, P. Sauvan und R. Nolte. Simulation of neutron production using MCN-PX+MCUNED. *Radiat. Prot. Dosim.* **161**, 261–264 (2013).  
DOI: [10.1093/rpd/nct252](https://doi.org/10.1093/rpd/nct252)
- H. G. Essel. *GSI Lean easy Analysis, User Manual*, Version 3.5. GSI, Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH, Planckstraße 1, D-64291 Darmstadt, Germany (2002).  
[http://web-docs.gsi.de/~mbs/leauser/Lea\\_user\\_3\\_5.pdf](http://web-docs.gsi.de/~mbs/leauser/Lea_user_3_5.pdf)
- H. G. Essel und N. Kurz. *GSI Multi-Branch System - Reference Manual*, Version 5.1. GSI, Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH, Planckstraße 1, D-64291 Darmstadt, Germany (2010).  
[https://www.gsi.de/fileadmin/EE/MBS/gm\\_mbs\\_c\\_01.pdf](https://www.gsi.de/fileadmin/EE/MBS/gm_mbs_c_01.pdf)
- Europäische Kommission. *RP7 - die Antworten von morgen beginnen schon heute*. Broschüre, Europäische Kommission (2006).  
[https://ec.europa.eu/research/participants/portal/doc/call/fp7/common/30034-fp7-factsheets\\_de.pdf](https://ec.europa.eu/research/participants/portal/doc/call/fp7/common/30034-fp7-factsheets_de.pdf)
- H. Feshbach, C. E. Porter und V. F. Weisskopf. Model for Nuclear Reactions with Neutrons. *Phys. Rev.* **96**, 448–464 (1954).  
DOI: [10.1103/physrev.96.448](https://doi.org/10.1103/physrev.96.448)

- U. Fischer und H. W. Wiese. *Verbesserte konsistente Berechnung des nuklearen Inventars abgebrannter DWR-Brennstoffe auf Basis von Zell-Abbrand-Verfahren mit KORIGEN*. Report **KfK 3014**, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Hermann-von-Helmholtz-Platz 1, 76344 Eggenstein-Leopoldshafen (1983).
- G. Folger und J. Wellisch. String parton models in GEANT4. *eConf C0303241*, MOMT007 (2003).  
<http://arxiv.org/abs/nucl-th/0306007>
- E. Fomushkin und E. Gutnikova. Cross sections and angular distributions of fragments in the fission of Pu-238, Pu-242 and Am-241 by neutrons of energies from 0.45 up to 3.6 MeV. *Yadernaya Fizika* **10**, 917 (1969).
- C. Frei, R. Whitney, H.-W. Schiffer, K. Rose, D. A. Rieser, A. Al-Qahtani, P. Thomas, H. Turton, M. Densing, E. Panos und K. Volkart. *World Energy Scenarios-Composing energy futures to 2050*. Report, World Energy Council, Regency House, 1 – 4 Warwick Street, London W1B 5LT, United Kingdom (2013).  
[https://www.worldenergy.org/wp-content/uploads/2013/10/World-Energy-Scenarios\\_Composing-energy-futures-to-2050\\_Full-report1.pdf](https://www.worldenergy.org/wp-content/uploads/2013/10/World-Energy-Scenarios_Composing-energy-futures-to-2050_Full-report1.pdf)
- O. R. Frisch. Physical Evidence for the Division of Heavy Nuclei under Neutron Bombardment. *Nature* **143**, 276–276 (1939).  
DOI: [10.1038/143276a0](https://doi.org/10.1038/143276a0)
- O. R. Frisch. Isotope Analysis of Uranium Samples by Means of Their  $\alpha$ -Ray Groups. *British Atomic Energy Report* **49** (1944).
- D. B. Gayther. *Fission chamber for BIPM Fast Neutron Fluence Intercomparison*. Technischer Report, A.E.R.E. Harwell, Didcot Oxfordshire OX11 0RA, United Kingdom (1979).
- D. B. Gayther. International Intercomparison of Fast Neutron Fluence-Rate Measurements Using Fission Chamber Transfer Instruments. *Metrologia* **27**, 221–231 (1990).  
DOI: [10.1088/0026-1394/27/4/006](https://doi.org/10.1088/0026-1394/27/4/006)
- Z. G. Ge, Z. X. Zhao, H. H. Xia, Y. X. Zhuang, T. J. Liu, J. S. Zhang und H. C. Wu. The Updated Version of Chinese Evaluated Nuclear Data Library (CENDL-3.1). *J. Korean Phys. Soc.* **59**, 1052 (2011).  
DOI: [10.3938/jkps.59.1052](https://doi.org/10.3938/jkps.59.1052)

- D. Gedcke und W. McDonald. A constant fraction of pulse height trigger for optimum time resolution. *Nucl. Instr. and Meth.* **55**, 377–380 (1967).  
DOI: [10.1016/0029-554x\(67\)90145-0](https://doi.org/10.1016/0029-554x(67)90145-0)
- D. Gedcke und W. McDonald. Design of the constant fraction of pulse height trigger for optimum time resolution. *Nucl. Instr. and Meth.* **58**, 253–260 (1968).  
DOI: [10.1016/0029-554x\(68\)90473-4](https://doi.org/10.1016/0029-554x(68)90473-4)
- K. Glover, L. Bint, D. Gayther, M. King, B. Whittaker und R. Wiltshire. The preparation of stable and actinide nuclide targets for nuclear measurements. *Nucl. Instr. and Meth.* **200**, 151–160 (1982).  
DOI: [10.1016/0167-5087\(82\)90527-0](https://doi.org/10.1016/0167-5087(82)90527-0)
- I. Gontchar, P. Fröbrich und N. Pischasov. Consistent dynamical and statistical description of fission of hot nuclei. *Phys. Rev. C* **47**, 2228–2235 (1993).  
DOI: [10.1103/physrevc.47.2228](https://doi.org/10.1103/physrevc.47.2228)
- E. M. Gonzalez. *CHANDA – Description of Work*. Projekt Report, European Commission (2013).  
[http://win.ciemat.es/chanda/DOW\\_CHANDA\\_605203\\_2013\\_06\\_28.pdf](http://win.ciemat.es/chanda/DOW_CHANDA_605203_2013_06_28.pdf)
- S. Goriely, S. Hilaire, A. J. Koning, M. Sin und R. Capote. Towards a prediction of fission cross sections on the basis of microscopic nuclear inputs. *Phys. Rev. C* **79**, 024612 (2009).  
DOI: [10.1103/physrevc.79.024612](https://doi.org/10.1103/physrevc.79.024612)
- O. Hahn und F. Strassmann. Über den Nachweis und das Verhalten der bei der Bestrahlung des Urans mittels Neutronen entstehenden Erdalkalimetalle. *Naturwissenschaften* **27**, 11–15 (1939).  
DOI: [10.1007/BF01488241](https://doi.org/10.1007/BF01488241)
- R. Hannaske. Fast Digitizing and Digital Signal Processing of Detector Signals. Diploma thesis, Technische Universität Dresden (2008).
- R. Hannaske, Z. Elekes, R. Beyer, A. Junghans, D. Bemmerer, E. Birgersson, A. Ferrari, E. Grosse, M. Kempe, T. Kögler, M. Marta, R. Massarczyk, A. Matic, G. Schramm, R. Schwengner und A. Wagner. Neutron total cross section measurements of gold and tantalum at the nELBE photoneutron source. *Eur. Phys. J. A* **49** (2013).  
DOI: [10.1140/epja/i2013-13137-1](https://doi.org/10.1140/epja/i2013-13137-1)

- W. Hauser und H. Feshbach. The Inelastic Scattering of Neutrons. *Phys. Rev.* **87**, 366–373 (1952).  
DOI: [10.1103/physrev.87.366](https://doi.org/10.1103/physrev.87.366)
- K. Heidel. *Charge Sensitive Preamplifier (CSP)*. Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf, Bautzner Landstraße 400, 01328 Dresden, Germany (2014).  
<http://www.hzdr.de/db/Cms?p0id=39843>
- W. Heisenberg. *Der Teil und das Ganze: Gespräche im Umkreis der Atomphysik*. Piper Taschenbuch (1996).  
<https://books.google.de/books?id=28mmSwAACAAJ>
- M. Herman, R. Capote, B. Carlson, P. Obložinský, M. Sin, A. Trkov, H. Wienke und V. Zerkin. EMPIRE: Nuclear Reaction Model Code System for Data Evaluation. *Nucl. Data Sheets* **108**, 2655–2715 (2007).  
DOI: [10.1016/j.nds.2007.11.003](https://doi.org/10.1016/j.nds.2007.11.003)
- S. Hilaire, S. Goriely und A. J. Koning. Global microscopic nuclear level densities within the HFB plus combinatorial method for practical applications. *ND2007*, 199–201 (2007).  
DOI: [10.1051/ndata:07259](https://doi.org/10.1051/ndata:07259)
- S. Hilaire, C. Lagrange und A. Koning. Comparisons between various width fluctuation correction factors for compound nucleus reactions. *Ann. of Phys.* **306**, 209–231 (2003).  
DOI: [10.1016/s0003-4916\(03\)00076-9](https://doi.org/10.1016/s0003-4916(03)00076-9)
- D. L. Hill und J. A. Wheeler. Nuclear Constitution and the Interpretation of Fission Phenomena. *Phys. Rev.* **89**, 1102–1145 (1953).  
DOI: [10.1103/physrev.89.1102](https://doi.org/10.1103/physrev.89.1102)
- N. E. Holden und D. C. Hoffman. Spontaneous fission half-lives for ground-state nuclide (Technical Report). *Pure Appl. Chem.* **72**, 1525–1562 (2000).  
DOI: [10.1351/pac200072081525](https://doi.org/10.1351/pac200072081525)
- R. J. Holt, H. E. Jackson, R. M. Laszewski und J. R. Specht. High-resolution photoneutron study of  $E1$  and  $M1$  transitions in  $^{208}\text{Pb}$ . *Phys. Rev. C* **20**, 93–114 (1979).  
DOI: [10.1103/physrevc.20.93](https://doi.org/10.1103/physrevc.20.93)
- IAEA. *International Evaluation of Neutron Cross-Section Standards*. International Atomic Energy Agency, Vienna International Centre, PO Box 100, A-1400 Vienna, Austria (2007).  
[http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/Pub1291\\_web.pdf](http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/Pub1291_web.pdf)

- IAEA. *Live Chart of Nuclides*. International Atomic Energy Agency-Nuclear Data Section, Vienna International Centre, PO Box 100, A-1400 Vienna, Austria (2015).  
<https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>
- IAEA. *Power Reactor Information System*. International Atomic Energy Agency, Vienna International Centre, PO Box 100, A-1400 Vienna, Austria (2016).  
<https://www.iaea.org/PRIS/home.aspx>
- ICRU. *Stopping of ions heavier than helium*. Report **73**, International Commission on Radiation Units and Measurements, Oxford University Press (2005).
- A. V. Ignatyuk, V. Maslov und A. B. Pashchenko. Consistent analysis of cross sections of (n,f) and (n,xn) reactions for the actinides. *Sov. J. Nucl. Phys.* **47**, 224–228 (1988).
- O. Iwamoto. Development of a Comprehensive Code for Nuclear Data Evaluation, CCONE, and Validation Using Neutron-Induced Cross Sections for Uranium Isotopes. *J. Nucl. Sci. Technol.* **44**, 687–697 (2007).  
DOI: [10.1080/18811248.2007.9711857](https://doi.org/10.1080/18811248.2007.9711857)
- T. Iwasaki, F. Manabe, M. Baba, S. Matsuama, H. Kimiyama und N. Hirakawa. Measurement of Fast Neutron Induced Fission Cross Section Ratios of Pu-240 and Pu-242 Relative to U-235. *J. Nucl. Sci. Technol.* **27**, 885–898 (1990).  
DOI: [10.1080/18811248.1990.9731269](https://doi.org/10.1080/18811248.1990.9731269)
- A. Jochmann, A. Irman, M. Bussmann, J. P. Couperus, T. E. Cowan, A. D. Debus, M. Kuntzsch, K. W. D. Ledingham, U. Lehnert, R. Sauerbrey, H. P. Schlenvoigt, D. Seipt, T. Stöhlker, D. B. Thorn, S. Trotsenko, A. Wagner und U. Schramm. High Resolution Energy-Angle Correlation Measurement of Hard X Rays from Laser-Thomson Backscattering. *Phys. Rev. Lett.* **111**, 114803 (2013).  
DOI: [10.1103/physrevlett.111.114803](https://doi.org/10.1103/physrevlett.111.114803)
- A. V. Karpov, A. Kelić und K.-H. Schmidt. On the topographical properties of fission barriers. *J. Phys. G: Nucl. Part. Phys.* **35**, 035104 (2008).  
DOI: [10.1088/0954-3899/35/3/035104](https://doi.org/10.1088/0954-3899/35/3/035104)
- N. A. Khan, H. A. Khan, K. Gul, R. A. Akber, M. Anwar, A. Waheed, G. Hussain und M. Shaikh. A new approach to measure reaction parameters in the 14.8 MeV neutron induced fission of  $^{240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Pu}$ . *Nucl. Instr. and Meth.* **173**, 137–142 (1980).  
DOI: [10.1016/0029-554x\(80\)90578-9](https://doi.org/10.1016/0029-554x(80)90578-9)

- J. Klug, E. Altstadt, C. Beckert, R. Beyer, H. Freiesleben, V. Galindo, E. Grosse, A. Jung-hans, D. Légrády, B. Naumann, K. Noack, G. Rusev, K. Schilling, R. Schlenk, S. Schneider, A. Wagner und F.-P. Weiss. Development of a neutron time-of-flight source at the ELBE accelerator. *Nucl. Instr. and Meth. A* **577**, 641–653 (2007).  
DOI: [10.1016/j.nima.2007.04.132](https://doi.org/10.1016/j.nima.2007.04.132)
- H.-H. Knitter, F.-J. Hambsch, C. Budtz-Jorgensen und J. P. Theobald. Three Exit Channels in the Fission of  $^{235}\text{U}(n, f)$ . *Z. Naturforsch* **42a**, 786–790 (1987).  
[http://zfn.mpg.de/data/Reihe\\_A/42/ZNA-1987-42a-0786.pdf](http://zfn.mpg.de/data/Reihe_A/42/ZNA-1987-42a-0786.pdf)
- G. F. Knoll. *Radiation Detection and Measurement*. Wiley, 4. Auflage (2010).
- H. Koch und J. Motz. Bremsstrahlung Cross-Section Formulas and Related Data. *Rev. Mod. Phys.* **31**, 920–955 (1959).  
DOI: [10.1103/revmodphys.31.920](https://doi.org/10.1103/revmodphys.31.920)
- E. Konecny, H. Specht und H. Weber. Symmetric and Asymmetric Fission of Ra- and Ac-Isotopes. In *Physics and Chemistry of Fission*, Band II, Seiten 3–18. International Atomic Energy Agency (1974).  
<https://www-nds.iaea.org/publications/proceedings/Physics-and-Chemistry-of-Fission-1973-Vol-II.pdf>
- A. Koning. Discrepancies between Talys 1.6 and TENDL-2014. Persönliche Kommunikation (2015).
- A. Koning, R. Forrest, M. Kellett, R. Mills, H. Henriksson und Y. Rugama. *The JEFF-3.1 Nuclear Data Library*. JEFF Report **21**, OECD-NEA, Nuclear Energy Agency Organisation for Economic Co-Operation and Development (2006).  
[https://www.oecd-nea.org/dbdata/nds\\_jefreports/jefreport-21/jeff21.pdf](https://www.oecd-nea.org/dbdata/nds_jefreports/jefreport-21/jeff21.pdf)
- A. Koning und D. Rochman. Modern Nuclear Data Evaluation with the TALYS Code System. *Nucl. Data Sheets* **113**, 2841–2934 (2012).  
DOI: [10.1016/j.nds.2012.11.002](https://doi.org/10.1016/j.nds.2012.11.002)
- A. Koning, D. Rochman, J. Kopecky, J. C. Sublet, E. Bauge, S. Hilaire, P. Romain, B. Morillon, H. Duarte, S. van der Marck, S. Pomp, H. Sjostrand, R. Forrest, H. Henriksson, O. Cabellos, S. Goriely, J. Leppanen, H. Leeb, A. Plompen und R. Mills. *TENDL-2015: TALYS-based evaluated nuclear data library*. CEA Bruyeres-le-Chatel (2015).  
[https://tendl.web.psi.ch/tendl\\_2015/tendl2015.html](https://tendl.web.psi.ch/tendl_2015/tendl2015.html)

- S. S. Kovalenko, K. A. Petržak, K. Irmer und G. Musiol. Die Anwendung der Methode der zeitlich korrelierten assoziierten Teilchen (MEZKAT). *Isotopenpraxis Isotopes in Environmental and Health Studies* **21**, 344–346 (1985).  
DOI: [10.1080/10256018508623541](https://doi.org/10.1080/10256018508623541)
- H. Kramers. Brownian motion in a field of force and the diffusion model of chemical reactions. *Physica* **7**, 284–304 (1940).  
DOI: [10.1016/s0031-8914\(40\)90098-2](https://doi.org/10.1016/s0031-8914(40)90098-2)
- H. A. Kramers. On the theory of X-ray absorption and of the continuous X-ray spectrum. *Philos. Mag.* **46**, 836–871 (1923).  
DOI: [10.1080/14786442308565244](https://doi.org/10.1080/14786442308565244)
- V. M. Kupriyanov, B. I. Fursov, B. K. Maslennikov, V. M. Surin und G. N. Smirenkin. Measurement of the  $^{240}\text{Pu}/^{235}\text{U}$  and  $^{242}\text{Pu}/^{235}\text{U}$  fission cross-section ratios for 0.127–7.4 MeV neutrons. *At. Energ. (USSR)* **46**, 35–39 (1979).  
DOI: [10.1007/bf01119949](https://doi.org/10.1007/bf01119949)
- A. Lechner, V. Ivanchenko und J. Knobloch. Validation of recent Geant 4 physics models for application in carbon ion therapy. *Nucl. Instr. and Meth. B* **268**, 2343–2354 (2010).  
DOI: [10.1016/j.nimb.2010.04.008](https://doi.org/10.1016/j.nimb.2010.04.008)
- P. Möller, D. Madland, A. Sierk und A. Iwamoto. Nuclear fission modes and fragment mass asymmetries in a five-dimensional deformation space. *Nature* **409**, 785–790 (2001).  
DOI: [10.1038/35057204](https://doi.org/10.1038/35057204)
- A. Mamdouh, J. M. Pearson, M. Rayet und F. Tondeur. Fission barriers of neutron-rich and superheavy nuclei calculated with the ETFSI method. *Nucl. Phys. A* **679**, 337–358 (2001).  
DOI: [10.1016/s0375-9474\(00\)00358-4](https://doi.org/10.1016/s0375-9474(00)00358-4)
- M. Martin. Nuclear Data Sheets for  $A = 208$ . *Nucl. Data Sheets* **108**, 1583–1806 (2007).  
DOI: [10.1016/j.nds.2007.07.001](https://doi.org/10.1016/j.nds.2007.07.001)
- T. Mayer-Kuckuk. *Kernphysik*. Teubner, 7. überarb. & erw. Auflage (2002).
- J. Meadows. The Fission Cross Sections of Plutonium-239 and Plutonium-242 Relative to Uranium-235 from 0.1 to 10 MeV. *Nucl. Sci. Eng.* **68**, 360–363 (1978a).  
<http://epubs.ans.org/?a=27315>

- J. W. Meadows. *Alpha and spontaneous fission half-lives of  $^{242}\text{Pu}$* . BNL-NCS **24273**, Argonne National Laboratory, 9700 S. Cass Avenue, Argonne, IL 60439, USA (1978b). ANL/NDM-38.
- E. Mendoza und D. Cano-Ott. *Recommendations for running the G4NeutronHP package* (2012).  
[http://wwwae.ciemat.es/~arce/particle\\_hp/BriefInstructions\\_G4NeutronHP\\_v5.pdf](http://wwwae.ciemat.es/~arce/particle_hp/BriefInstructions_G4NeutronHP_v5.pdf)
- C. Nelson. *The Age of Radiance: The Epic Rise and Dramatic Fall of the Atomic Era*. Scribner, 1. Auflage (2014).  
[http://slubdd.de/katalog?libero\\_mab216046000](http://slubdd.de/katalog?libero_mab216046000)
- M. Nikolaev und V. Koscheev. *RUSFOND*. Physikalisch-Energetisches-Institut A. I. Leipunsky, IPPE, Obninsk (2006).  
<http://www.ippe.ru/podr/abbn/english/libr/pdf/00intr.pdf>
- R. Nolte, M. S. Allie, F. D. Brooks, A. Buffler, V. Dangendorf, J. P. Meulders, H. Schuhmacher, F. D. Smit und M. Weierganz. Cross sections for neutron-induced fission of  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{209}\text{Bi}$ , and  $^{nat}\text{Pb}$  in the energy range from 33 to 200 MeV measured relative to n-p scattering. *Nucl. Sci. Eng.* **156**, 197–210 (2007).  
DOI: [10.13182/NSE06-14](https://doi.org/10.13182/NSE06-14)
- R. Nolte und D. J. Thomas. Monoenergetic fast neutron reference fields: II. Field characterization. *Metrologia* **48**, S274–S291 (2011).  
DOI: [10.1088/0026-1394/48/6/s05](https://doi.org/10.1088/0026-1394/48/6/s05)
- Nucleonica. *webKORIGEN*. European Atomic Energy Community, Institute for Transuranium Elements (ITU), Hermann-von-Helmholtz Platz 1, 76344 Eggenstein-Leopoldshafen, Germany (2016).  
<http://www.nucleonica.net/>
- OECD und NEA. Nuclear Energy Today (Second Edition). *Nuclear Development* (2013).  
DOI: [10.1787/9789264179233-en](https://doi.org/10.1787/9789264179233-en)
- OECD und NEA. *JEFF-3.2 evaluated data library-Neutron data* (2014).  
[https://www.oecd-nea.org/dbforms/data/eva/evatapex/jeff\\_32/](https://www.oecd-nea.org/dbforms/data/eva/evatapex/jeff_32/)

- K. Otozai, J. Meadows, A. Behkami und J. Huizenga. Fragment angular distributions from neutron-induced fission of  $^{242}\text{Pu}$ . *Nucl. Phys. A* **144**, 502–512 (1970).  
DOI: [10.1016/0375-9474\(70\)90341-6](https://doi.org/10.1016/0375-9474(70)90341-6)
- N. Otuka, E. Dupont, V. Semkova, B. Pritychenko, A. Blokhin, M. Aikawa, S. Babykina, M. Bossant, G. Chen, S. Dunaeva, R. Forrest, T. Fukahori, N. Furutachi, S. Ganesan, Z. Ge, O. Gritzay, M. Herman, S. Hlavac, K. Kato, B. Lalremruata et al. Towards a More Complete and Accurate Experimental Nuclear Reaction Data Library (EXFOR): International Collaboration Between Nuclear Reaction Data Centres (NRDC). *Nucl. Data Sheets* **120**, 272–276 (2014).  
DOI: [10.1016/j.nds.2014.07.065](https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.07.065)
- W. Parker und R. Falk. Molecular plating: A method for the electrolytic formation of thin inorganic films. *Nucl. Instr. and Meth.* **16**, 355–357 (1962).  
DOI: [10.1016/0029-554x\(62\)90142-8](https://doi.org/10.1016/0029-554x(62)90142-8)
- Particle Data Group. Review of Particle Physics-Experimental Methods and Colliders. *Phys. Lett. B* **667**, 261–315 (2008).  
DOI: [10.1016/j.physletb.2008.07.029](https://doi.org/10.1016/j.physletb.2008.07.029)
- V. Pashkevich. On the asymmetric deformation of fissioning nuclei. *Nucl. Phys. A* **169**, 275–293 (1971).  
DOI: [10.1016/0375-9474\(71\)90884-0](https://doi.org/10.1016/0375-9474(71)90884-0)
- G. Pausch, C. M. Herbach, K. Merla, G. Musiol und R. Perez. *Determination of Fission Fragment Counting Losses from the Fission Chamber Spectrum*. INDC Report **INDC(GDR)-048**, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria (1987).  
<https://www-nds.iaea.org/publications/indc/indc-gdr-0048G.pdf>
- F. Peiffer, B. McStocker, D. Gründler, F. Ewig, B. Thomauske, A. Havenith und J. Kettler. *Abfallspezifikation und Mengengerüst – Basis Ausstieg aus der Kernenergienutzung*. Vorläufige Sicherheitsanalyse **278**, Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit (GRS), Schwertnergasse 1, 50667 Cologne, Germany (2011).  
<https://www.ptka.kit.edu/downloads/VSG-GRS-278.pdf>
- G. Peter, D. Behrens und C. C. Noack. Poincaré covariant particle dynamics. I. Intranuclear cascade model. *Phys. Rev. C* **49**, 3253–3265 (1994).  
DOI: [10.1103/physrevc.49.3253](https://doi.org/10.1103/physrevc.49.3253)

- W. D. Peterson. *The VMEbus Handbook*. VMEbus International Trade Association, Scottsdale, Arizona, USA, 4. Auflage (1997).  
<https://books.google.de/books?id=GZAsAAAACAAJ>
- A. Plompen, N. Nankov, C. Rouki, M. Stanoiu, C. Borcea, D. Deleanu, A. Negret, P. Dessagne, M. Kerveno, G. Rudolf, J. C. Thiry, M. Mosconi und R. Nolte. Method Developing and Testing for Inelastic Scattering Measurements at the GELINA Facility. *J. Korean Phys. Soc.* **59**, 1581–1584 (2011).  
DOI: [10.3938/jkps.59.1581](https://doi.org/10.3938/jkps.59.1581)
- W. P. Poenitz. Data interpretation, objective evaluation procedures and mathematical techniques for the evaluation of energy-dependent ratio, shape and cross section data. In S. M. Qaim (Editor), *Proc. Conf. Nuclear Data Evaluation Methods and Procedures*, Band I, Nr. BNL-NCS-51363, Seiten 249–284, Upton, USA. Brookhaven National Laboratory, NTIS (1981).  
[http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/\\_Public/12/626/12626392.pdf](http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/12/626/12626392.pdf)
- S. D. Poisson. *Lehrbuch der Wahrscheinlichkeitsrechnung und deren wichtigsten Anwendungen*. Meyer, Braunschweig (1841).
- J. Randrup und P. Möller. Brownian Shape Motion on Five-Dimensional Potential-Energy Surfaces: Nuclear Fission-Fragment Mass Distributions. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 132503 (2011).  
DOI: [10.1103/physrevlett.106.132503](https://doi.org/10.1103/physrevlett.106.132503)
- P. Salvador-Castiñeira, T. Bryś, R. Eykens, F.-J. Hamsch, A. Göök, A. Moens, S. Oberstedt, G. Sibbens, D. Vanleeuw, M. Vidali und C. Pretel. Neutron-induced fission cross sections of  $^{242}\text{Pu}$  from 0.3 MeV to 3 MeV. *Phys. Rev. C* **92**, 044606 (2015).  
DOI: [10.1103/physrevc.92.044606](https://doi.org/10.1103/physrevc.92.044606)
- P. Salvador-Castiñeira, T. Bryś, R. Eykens, F.-J. Hamsch, A. Moens, S. Oberstedt, G. Sibbens, D. Vanleeuw, M. Vidali und C. Pretel. Highly accurate measurements of the spontaneous fission half-life of  $^{240,242}\text{Pu}$ . *Phys. Rev. C* **88**, 064611 (2013).  
DOI: [10.1103/PhysRevC.88.064611](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.88.064611)

- M. Salvatores, I. Slessarev, G. Ritter, P. Fougeras, A. Tchistiakov, G. Youinou und A. Zaetta. Long-lived radioactive waste transmutation and the role of accelerator driven (hybrid) systems. *Nucl. Instr. and Meth. A* **414**, 5–20 (1998).  
DOI: [10.1016/s0168-9002\(98\)00522-1](https://doi.org/10.1016/s0168-9002(98)00522-1)
- L. I. Schiff. Energy-Angle Distribution of Betatron Target Radiation. *Phys. Rev.* **70**, 87–87 (1946).  
DOI: [10.1103/physrev.70.87](https://doi.org/10.1103/physrev.70.87)
- P. Schillebeeckx, B. Becker, Y. Danon, K. Guber, H. Harada, J. Heyse, A. Junghans, S. Kopecky, C. Massimi, M. Moxon, N. Otuka, I. Sirakov und K. Volev. Determination of Resonance Parameters and their Covariances from Neutron Induced Reaction Cross Section Data. *Nucl. Data Sheets* **113**, 3054–3100 (2012).  
DOI: [10.1016/j.nds.2012.11.005](https://doi.org/10.1016/j.nds.2012.11.005)
- K.-H. Schmidt, B. Jurado und C. Amouroux. *General Description of Fission Observables – GEF Model*. JEFF Report **24**, Nuclear Energy Agency (NEA) and Organisation for Economic Co-Operation and Development (OECD), Gradignan, France (2014).  
<http://www.khs-erzhausen.de/Preprints/db-doc2014-1.pdf>
- R. Schwengner, R. Massarczyk, B. A. Brown, R. Beyer, F. Dönau, M. Erhard, E. Grosse, A. R. Junghans, K. Kosev, C. Nair, G. Rusev, K. D. Schilling und A. Wagner.  $E1$  strength in  $^{208}\text{Pb}$  within the shell model. *Phys. Rev. C* **81**, 054315 (2010).  
DOI: [10.1103/PhysRevC.81.054315](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.81.054315)
- A. Schwenk-Ferrero. German Spent Nuclear Fuel Legacy: Characteristics and High-Level Waste Management Issues. *Science and Technology of Nuclear Installations* **2013**, 1–11 (2013).  
DOI: [10.1155/2013/293792](https://doi.org/10.1155/2013/293792)
- K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Iwamoto, A. Ichihara, S. Kunieda, S. Chiba, K. Furutaka, N. Otuka und T. Ohasawa. JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering. *J. Nucl. Sci. Technol.* **48**, 1–30 (2011).  
DOI: [10.1080/18811248.2011.9711675](https://doi.org/10.1080/18811248.2011.9711675)
- D. L. Shpak. Angular anisotropy of the fragments from  $^{242}\text{Pu}$  fission by 0.1–6.38 MeV neutrons. *Sov. J. Nucl. Phys.* **52**, 419–423 (1990).

- C. G. Shull. *Les Prix Nobel 1994: Nobel prizes, presentations, biographies and lectures*. Stockholm: Nobel Foundation (1995).  
[http://www.nobelprize.org/nobel\\_prizes/physics/laureates/1994/shull-speech.html](http://www.nobelprize.org/nobel_prizes/physics/laureates/1994/shull-speech.html)
- A. J. Sierk. Macroscopic model of rotating nuclei. *Phys. Rev. C* **33**, 2039–2053 (1986).  
DOI: [10.1103/physrevc.33.2039](https://doi.org/10.1103/physrevc.33.2039)
- J. E. Simmons, R. B. Perkins und R. L. Henkel. Anisotropy of Fragments in the Neutron-Induced Fission of  $\text{Pu}^{240}$ ,  $\text{Pu}^{242}$ , and  $\text{Pu}^{241}$ . *Phys. Rev.* **137**, B809–B813 (1965).  
DOI: [10.1103/physrev.137.b809](https://doi.org/10.1103/physrev.137.b809)
- M. Sin, R. Capote, A. Ventura, M. Herman und P. Oblozinsky. Fission of light actinides:  $^{232}\text{Th}(n, f)$  and  $^{231}\text{Pa}(n, f)$  reactions. *Phys. Rev. C* **74**, 014608 (2006).  
DOI: [10.1103/physrevc.74.014608](https://doi.org/10.1103/physrevc.74.014608)
- M. Sin, P. Oblozinsk, M. Herman und R. Capote. Fission Cross section Calculations of Actinides with EMPIRE Code. *J. Korean Phys. Soc.* **59**, 1015–1018 (2011).  
DOI: [10.3938/jkps.59.1015](https://doi.org/10.3938/jkps.59.1015)
- G. Smirenkin. *Preparation of Evaluated Data for a Fission Barrier Parameter Library for Isotopes with  $Z = 82-98$ , with Consideration of the Level Density Models Used*. INDC Report **359**, IAEA (1993).  
<https://www-nds.iaea.org/publications/indc/indc-ccp-0359.pdf>
- P. Staples und K. Morley. Neutron-Induced Fission Cross-Section Ratios for  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ , and  $^{244}\text{Pu}$  Relative to  $^{235}\text{U}$  from 0.5 to 400 MeV. *Nucl. Sci. Eng.* **129**, 149–163 (1998).  
[http://www.ans.org/pubs/journals/nse/a\\_1969](http://www.ans.org/pubs/journals/nse/a_1969)
- F. H. Tenney. Idealized pulse pileup effects on energy spectra. *Nucl. Instr. and Meth.* **219**, 165–172 (1984).  
DOI: [10.1016/0167-5087\(84\)90150-9](https://doi.org/10.1016/0167-5087(84)90150-9)
- The Generation IV International Forum (GIF). *Technology Roadmap Update for Generation IV Nuclear Energy Systems*. Roadmap, Nuclear Energy Agency (NEA) and Organisation for Economic Co-Operation and Development (OECD) (2014).  
<https://www.gen-4.org/gif/upload/docs/application/pdf/2014-03/gif-tru2014.pdf>

- F. Tovesson, T. Hill, M. Mocko, J. Baker und C. McGrath. Neutron induced fission of  $^{240,242}\text{Pu}$  from 1 eV to 200 MeV. *Phys. Rev. C* **79**, 014613 (2009).  
DOI: [10.1103/PhysRevC.79.014613](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.79.014613)
- R. Vandenbosch und J. R. Huizenga. *Nuclear Fission*. Academic Press Inc. (1973).
- A. Vascon, C. E. Düllmann, K. Eberhardt, B. Kindler, B. Lommel und J. Runke. Toward large-area targets for “TRAKULA”. *Nucl. Instr. and Meth. A* **655**, 72–79 (2011).  
DOI: [10.1016/j.nima.2011.06.024](https://doi.org/10.1016/j.nima.2011.06.024)
- A. Vascon, J. Runke, N. Trautmann, B. Cremer, K. Eberhardt und C. Düllmann. Quantitative molecular plating of large-area  $^{242}\text{Pu}$  targets with improved layer properties. *Appl. Radiat. Isot.* **95**, 36–43 (2015).  
DOI: [10.1016/j.apradiso.2014.10.002](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2014.10.002)
- A. Vascon, S. Santi, A. Isse, T. Reich, J. Drebert, H. Christ, C. Düllmann und K. Eberhardt. Elucidation of constant current density molecular plating. *Nucl. Instr. and Meth. A* **696**, 180–191 (2012).  
DOI: [10.1016/j.nima.2012.08.072](https://doi.org/10.1016/j.nima.2012.08.072)
- H. Weigmann, J. Wartena und C. Bürkholz. Neutron-induced fission cross section of  $^{242}\text{Pu}$ . *Nucl. Phys. A* **438**, 333–353 (1985).  
DOI: [10.1016/0375-9474\(85\)90379-3](https://doi.org/10.1016/0375-9474(85)90379-3)
- L. Willets. *Theories of Nuclear Fission*. Oxford University Press, 1. Auflage (1964).
- WNA. *Radioactive Waste Management*. World Nuclear Association, Tower House, 10 Southampton Street, London, WC2E 7HA, United Kingdom (2015).  
<http://world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/nuclear-wastes/radioactive-waste-management.aspx>
- WPEC. *Uncertainty and Target Accuracy Assessment for Innovative Systems Using Recent Covariance Data Evaluations*. Technischer Report, Working Party on International Evaluation Co-Operation, OECD / NEA (2008).  
<http://www.oecd-nea.org/science/wpec/volume26/volume26.pdf>
- WPEC. *The High Priority Request List for Nuclear Data (HPRL)*. Working Party on International Evaluation Co-Operation, OECD / NEA (2011).  
<http://www.oecd-nea.org/dbdata/hprl/>

# Abbildungsverzeichnis

Abb. 1.0.1:	Zusammensetzung eines abgebrannten Uranoxid-Brennelements . . . . .	2
Abb. 1.0.2:	Radiotoxizität 1 t <sub>SM</sub> abgebrannten Kernbrennstoffs . . . . .	3
Abb. 1.3.1:	Experimentelle <sup>242</sup> Pu(n,f)-Wirkungsquerschnitte aus EXFOR . . . . .	10
Abb. 1.4.1:	Kerndatenevaluierungen der Reaktion <sup>242</sup> Pu(n,f) . . . . .	13
Abb. 2.1.1:	<sup>238</sup> U-Spaltquerschnitt . . . . .	18
Abb. 2.1.2:	Kernpotential eines Actinoidenkerns . . . . .	21
Abb. 2.1.3:	Energieschema der neutroneninduzierten Spaltung . . . . .	21
Abb. 2.2.1:	Kernreaktionsrechnungen . . . . .	23
Abb. 3.0.1:	Grundriss ELBE . . . . .	26
Abb. 3.0.2:	Foto der Photoneutronenquelle . . . . .	27
Abb. 3.0.3:	Aufbau der Photoneutronenquelle . . . . .	28
Abb. 3.0.4:	Spektrale Neutronenflussdichte des nELBE-Strahls . . . . .	29
Abb. 3.0.5:	Strahldurchmesser des nELBE-Neutronenstrahls . . . . .	30
Abb. 4.1.1:	Design der Actinoiden-Depositionszelle. . . . .	35
Abb. 4.1.2:	Fotografie eines Plutoniumdeposits . . . . .	36
Abb. 4.1.3:	Radiographien der Urandeposits . . . . .	38
Abb. 4.1.4:	Radiographien der Plutoniumdeposits . . . . .	39
Abb. 4.1.5:	Intensitätshäufigkeitsverteilungen der summierten Radiographien . . . . .	40
Abb. 4.1.6:	Vergleich von Vorverstärkersignalformen . . . . .	42
Abb. 4.1.7:	Modell der Spaltkammer . . . . .	43
Abb. 4.1.8:	Fotos vom Zusammenbau der Spaltkammern . . . . .	44
Abb. 4.1.9:	Gasversorgung . . . . .	45
Abb. 4.1.10:	Durchfluss- und Differenzdruckverlauf beim Spülvorgang . . . . .	47
Abb. 4.1.11:	Durchfluss- und Differenzdruckverlauf beim Experiment . . . . .	47
Abb. 4.1.12:	Elektrischer Feldstärkeverlauf zwischen den Elektroden . . . . .	49
Abb. 4.1.13:	Einfluss der Schwebstofffilter auf die Homogenität des $\vec{E}$ -Feldes . . . . .	50
Abb. 4.1.14:	Geometrischer Aufbau der Geant 4-Simulation zur Pulshöhenbestimmung . . . . .	53

Abb. 4.1.15:	Energiedeposition und Ladungsverteilung in Abhängigkeit des Elektrodenabstandes . . . . .	55
Abb. 4.1.16:	Zusammensetzung der Energiedeposition- und Ladungsverteilungen .	56
Abb. 4.1.17:	Charakteristische Impulsformen der Spaltkammer . . . . .	60
Abb. 4.1.18:	Signalanstiegszeiten in Abhängigkeit des Emissionswinkels . . . . .	61
Abb. 4.2.1:	Aufbau H19 . . . . .	63
Abb. 5.1.1:	Partielle $^{242}\text{Pu}$ -Halbwertszeiten für Spontanspaltung . . . . .	69
Abb. 5.2.1:	Neutronenstrahlstabilität . . . . .	72
Abb. 5.2.2:	Foto des experimentellen Aufbaus . . . . .	73
Abb. 5.2.3:	Skizze des experimentellen Aufbaus . . . . .	76
Abb. 5.3.1:	Schematischer Aufbau der Datenaufnahme und -verarbeitung . . . . .	82
Abb. 5.3.2:	Typische Signalformen der Datenverarbeitung . . . . .	83
Abb. 5.3.3:	Prinzip des ARC-Timings. . . . .	84
Abb. 5.4.1:	Impulshöhen- und Ladungsspektrum von H19 und PuFC . . . . .	87
Abb. 5.4.2:	Abweichung LED- zu CFD-Flugzeit . . . . .	88
Abb. 5.4.3:	Zeitdifferenzspektren von H19 und PuFC . . . . .	89
Abb. 5.4.4:	„Walk“-Effekt im Diskriminator für beide Spaltkammern . . . . .	90
Abb. 5.4.5:	Langzeitverhalten der Ladungs- bzw. Impulshöhenbestimmung . . . . .	91
Abb. 5.4.6:	Stabilität der Flugzeitbestimmung . . . . .	92
Abb. 5.4.7:	Flugzeitspektren der Spaltkammern. . . . .	94
Abb. 5.4.8:	Bestimmung der Spontanspaltrate . . . . .	97
Abb. 5.4.9:	Flugzeithistogramm H19 . . . . .	99
Abb. 5.4.10:	Flugzeithistogramm PuFC Kanal 1 . . . . .	99
Abb. 5.4.11:	Untergrundspektrum H19 . . . . .	100
Abb. 5.4.12:	Untergrundspektrum PuFC Kanal 1 . . . . .	101
Abb. 5.4.13:	Live- und Totzeit . . . . .	103
Abb. 5.4.14:	Carlson-Faktor . . . . .	106
Abb. 5.4.15:	Geant 4-Geometriemodell . . . . .	108
Abb. 5.4.16:	Simulierte Energie-Flugzeit-Korrelation . . . . .	109
Abb. 5.4.17:	Simulierte Energie-Flugzeit-Korrelation proportional zur Spaltrate . .	111
Abb. 5.4.18:	Korrelationskorrektur-Faktor . . . . .	111
Abb. 5.4.19:	Transmissionsfaktoren . . . . .	113
Abb. 5.4.20:	Korrekturfaktor $C$ . . . . .	115
Abb. 5.4.21:	Verhältnis der neutroneninduzierten Spaltung zur Spontanspaltung . .	116
Abb. 5.5.1:	Relativer $^{242}\text{Pu}(n,f)$ -Spaltquerschnitt . . . . .	118

---

Abb. 5.5.2:	Absoluter $^{242}\text{Pu}(\text{n,f})$ -Spaltquerschnitt . . . . .	118
Abb. 5.5.3:	Streukorrektur des gesamten Aufbaus . . . . .	119
Abb. 5.5.4:	Vergleich der gewonnenen Daten mit Kernreaktionsrechnungen . . . . .	123
Abb. A.1.1:	Depositionszellengehäuse . . . . .	128
Abb. A.1.2:	Depositionszellendeckel . . . . .	129
Abb. A.1.3:	Depositionszelle komplett . . . . .	130
Abb. A.3.1:	Massenverteilung vor Neutronenemission . . . . .	134
Abb. A.3.2:	Kinetische Energie der Spaltfragmente und totale kinetische Energie ( <i>TKE</i> ) für $^{242}\text{Pu}(\text{n,f})$ und $^{242}\text{Pu}(\text{SF})$ . . . . .	134
Abb. A.3.3:	Spaltfragmentverteilungen . . . . .	135
Abb. A.4.1:	Experimenteller Aufbau . . . . .	136
Abb. A.5.1:	Aufbau der Datenaufnahme. . . . .	137
Abb. A.5.2:	FPGA-Logik des Experiments. . . . .	138
Abb. A.6.1:	Konstanz der Spaltraten . . . . .	140
Abb. A.6.2:	Stabilität der Vorverstärker . . . . .	141
Abb. A.7.1:	Vergleich der neutroneninduzierten Spaltquerschnitte aller Plutonium- deposits . . . . .	142
Abb. A.7.2:	Vergleich des Spaltquerschnitts aus gewichtetem Mittel und aufsum- mierte Statistik . . . . .	143



# Tabellenverzeichnis

Tab. 1.3.1:	Zusammenfassung bisheriger Experimente . . . . .	9
Tab. 3.0.1:	Charakteristische Parameter des ELBE-Beschleunigers . . . . .	26
Tab. 4.1.1:	Isotopenzusammensetzung der verwendeten Probenmaterialien . . . . .	34
Tab. 4.1.2:	Eigenschaften der $n$ ELBE-Deposits . . . . .	37
Tab. 4.1.3:	Intrinsische Nachweeffizienz für Spaltfragmente . . . . .	59
Tab. 4.2.1:	Isotopenvektor der H19-Deposits. . . . .	62
Tab. 5.0.1:	Chronologischer Überblick über die durchgeführten Experimente . . . . .	65
Tab. 5.2.1:	Abstände innerhalb des Experimentieraufbaus . . . . .	77
Tab. 5.4.1:	Gemessene $^{242}\text{Pu}$ -Spontanspaltraten . . . . .	96
Tab. 5.4.2:	Abgeschiedene $^{242}\text{Pu}$ -Massen . . . . .	96
Tab. 5.5.1:	Normierungskonstanten samt ihrer Unsicherheiten . . . . .	117
Tab. 5.5.2:	Mittlere Abweichungen des gemessenen $^{242}\text{Pu}$ -Spaltquerschnitts zu ENDF/B-VII.1 und JEFF 3.2 . . . . .	120
Tab. 5.5.3:	Unsicherheiten des bestimmten Spaltquerschnitts . . . . .	122
Tab. A.2.1:	Vergleich von Neutronen-Flugzeitanlagen . . . . .	131
Tab. A.5.1:	Verwendete Elektronik-Module . . . . .	139



## Liste der verwendeten Akronyme

<b>ADC</b>	Amplituden-zu-Digital Wandler (engl.: <b>a</b> mplitude-to- <b>d</b> igital <b>c</b> onverter)
<b>ARC</b>	(-Timing), amplituden- und anstiegszeitkompensierende Technik zur Bestimmung der Zeitaufösung (engl.: <b>a</b> mplitude and <b>r</b> isetime <b>c</b> ompensated timing technique)
<b>CAD</b>	computergeneriertes Konstruktionsmodell (engl.: <b>c</b> omputer- <b>a</b> ided <b>d</b> esign)
<b>CERN</b>	Conseil <b>E</b> uropéen pour la <b>R</b> echerche <b>N</b> ucléaire
<b>CN</b>	Compoundkern (engl.: <b>c</b> ompound <b>n</b> ucleus)
<b>CFD</b>	Proportionaldiskriminator (engl.: <b>c</b> onstant- <b>f</b> raction- <b>d</b> iscriminator)
<b>cw</b>	Dauerstrichbetrieb (engl.: <b>c</b> ontinuous <b>w</b> ave)
<b>DAQ</b>	Datenaufnahme (engl.: <b>d</b> ata <b>a</b> cquisition)
<b>DMF</b>	<i>N,N</i> -Dimethylformamid (ein Lösungsmittel)
<b>ELBE</b>	Elektronen- <b>L</b> inearbeschleuniger für Strahlen hoher <b>B</b> rillanz und niedriger <b>E</b> mittanz
<b>ENDF</b>	Datenbank der evaluierten Kerndaten / Kerndatenformat (engl.: <b>E</b> valuated Nuclear <b>D</b> ata <b>F</b> ile / <b>F</b> ormat)
<b>FB</b>	Konfiguration des elektrischen Feldes $\vec{E}$ in Spaltionisationskammern, bei der die Elektrode mit dem spaltbaren Material die <i>Kathode</i> ist (engl.: <b>f</b> orward <b>b</b> iasing)
<b>FEL</b>	Freie <b>E</b> lektronen <b>L</b> aser
<b>FPGA</b>	feldprogrammierbare Gatteranordnung (engl.: <b>F</b> ield <b>P</b> rogrammable <b>G</b> ate <b>A</b> rray)
<b>FWHM</b>	volle Breite auf halber Höhe (engl.: <b>f</b> ull <b>w</b> idth at <b>h</b> alf <b>m</b> aximum)

<b>GEF</b>	Computercode zur Beschreibung von Observablen der Kernspaltung (engl.: <b>A General Description of Fission Observables</b> )
<b>GSI</b>	Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung GmbH, Darmstadt
<b>Go4</b>	ein auf Qt und ROOT basierendes Programm zur Analyse des MBS-Datenstroms, siehe Ref. [ <a href="#">Adamczewski-Musch et al., 2015</a> ]
<b>HEPA</b>	Schwebstofffilter der Kategorie H13 und H14 mit Abscheidegrad für 0,3 µm große Partikel zwischen 99,95 % und 99,995 % (engl. <b>high-efficiency particulate arrestance</b> )
<b>HFB</b>	Hartree-Fock-Bogoliubov, eine Mean-Field-Näherung
<b>HZDR</b>	Helmholtz-Zentrum Dresden - Rossendorf
<b>H19</b>	<sup>235</sup> U-Spaltionskammer und Transfergerät der PTB Braunschweig
<b>ICP-MS</b>	Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (engl.: <b>inductively coupled plasma mass spectrometry</b> )
<b>JGU</b>	Johannes Gutenberg-Universität Mainz
<b>LeA</b>	<b>Lean easy Analysis</b> Programm zur Analyse des MBS-Datenstroms, siehe Ref. <a href="#">Essel [2002]</a>
<b>LED</b>	Schwellwertdiskriminator (engl.: <b>leading-edge-discriminator</b> )
<b>MBS</b>	eine an der GSI entwickelte Datenaufnahme (engl.: <b>Multi Branch System</b> )
<b>MC</b>	Monte-Carlo-Simulation/-Methode. Verfahren aus der Stochastik, bei dem eine sehr große Zahl gleichartiger Zufallsexperimente die Basis bildet
<b>NEA</b>	Nuclear Energy Agency
<b>P10</b>	Gasgemisch aus 90 % Argon und 10 % Methan
<b>PCTFE</b>	<b>Polychlortrifluorethylen</b> , ein vollhalogeniertes Polymer
<b>PE</b>	<b>Polyethylen</b>
<b>PEEK</b>	<b>Polyetheretherketon</b> , ein hochtemperaturbeständiger thermoplastischer Kunststoff

---

<b>PIAF</b>	Ionenbeschleuniger der PTB Braunschweig (engl.: <b>PTB Ion Accelerator Facility</b> )
<b>PNT</b>	<b>P</b> hoto- <b>N</b> eutronentarget
<b>PTB</b>	<b>P</b> hysikalisch- <b>T</b> echnische <b>B</b> undesanstalt
<b>PuFC</b>	am HZDR entwickelte $^{242}\text{Pu}$ -Spaltionisationskammer
<b>QDC</b>	Ladungs-zu-Digital Wandler (engl.: <b>charge-to-digital converter</b> )
<b>RB</b>	Konfiguration des elektrischen Feldes $\vec{E}$ in Spaltionisationskammern, bei der die Elektrode mit dem spaltbaren Material die <i>Anode</i> ist (engl.: <b>reversed biasing</b> )
<b>RF</b>	hier die Wiederholfrequenz des Beschleunigers (engl. <b>radiofrequency</b> )
<b>RMS</b>	quadratisches Mittel (engl.: <b>root-mean-square</b> )
<b>TDC</b>	Zeit-zu-Digital Wandler (engl.: <b>time-to-digital converter</b> )
<b>TKE</b>	<b>T</b> otale <b>k</b> inetische <b>E</b> nergie (Observable beim Spaltprozess)
<b>SEM-EDX</b>	energiedispersive Röntgenspektroskopie im Rasterelektronenmikroskop (engl.: <b>scanning electron microscope - energy dispersive X-ray spectroscopy</b> )
<b>SF</b>	Spontanspaltung (engl.: <b>spontaneous fission</b> )
<b>SMA</b>	Koaxialschraubverbindung (engl.: <b>Sub-Miniature-A</b> )
<b>UFC</b>	am HZDR entwickelte $^{235}\text{U}$ -Spaltionisationskammer
<b>VME</b>	ein Mehrbenutzer-Bus-System (engl.: <b>Versa Module Eurocard</b> )
<b>WPEC</b>	<b>W</b> orking <b>P</b> arty on International <b>E</b> valuation <b>C</b> o-operation of the Nuclear Science Committee
<b>WQ</b>	Wirkungsquerschnitt



# Publikationen

- [1] A. Ferrari, R. Beyer, E. Birgersson, J. Claussner, E. Grosse, R. Hannaske, A. R. Junghans, **T. Kögler**, I. Kösterke, R. Massarczyk, A. Matic, K.-D. Schilling, G. Schramm, R. Schwengner, A. Wagner und F. Weiss. Shielding aspects of the new nELBE photo-neutron source. In S. Roesler (Editor), *Shielding Aspects of Accelerators, Targets and Irradiation Facilities – SATIF-10*, Nr. 6898. NEA, OECD (2010).
- [2] A. Ferrari, R. Beyer, E. Birgersson, J. Claussner, E. Grosse, R. Hannaske, A. R. Junghans, M. Kempe, **T. Kögler**, R. Massarczyk, A. Matic, K.-D. Schilling, G. Schramm, R. Schwengner, A. Wagner, F. Weiss und D. Yakorev. Optimization aspects of the new nELBE photo-neutron source. *EPJ Web of Conferences* **8**, 05002 (2010).  
DOI: [10.1051/epjconf/20100805002](https://doi.org/10.1051/epjconf/20100805002)
- [3] A. Wagner, D. Bemmerer, R. Beyer, E. Birgersson, A. Ferrari, E. Grosse, R. Hannaske, A. R. Junghans, M. Kempe, **T. Kögler**, M. Marta, A. Matic, R. Nolte, K.-D. Schilling, G. Schramm, R. Schwengner, F.-P. Weiss und D. Yakorev. Fast Neutron Cross-Section Measurements with the nELBE Neutron Time-of-Flight Facility. In *Proceedings of the 18th International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei: Neutron Spectroscopy, Nuclear Structure, Related Topics, 26.-29.05.2010, Dubna, Russia*, Nr. 978-5-9530-0277-6, Seiten 127–134 (2010).
- [4] R. Beyer, D. Bemmerer, E. Grosse, R. Hannaske, A. R. Junghans, M. Kempe, **T. Kögler**, R. Massarczyk, R. Nolte, R. Schwengner und A. Wagner. Fast neutron inelastic scattering at the nELBE facility. *JINST* **7**, C02020 (2012).  
DOI: [10.1088/1748-0221/7/02/c02020](https://doi.org/10.1088/1748-0221/7/02/c02020)
- [5] **T. Kögler**. Pulsformdiskrimination und Lichtausbeutemessungen von LAB-basierten Flüssigszintillatoren. Diplomarbeit, Technische Universität Dresden (2012).
- [6] **T. Kögler**, A. R. Junghans, R. Beyer, R. Hannaske, R. Massarczyk, R. Schwengner und A. Wagner. Light yield and n- $\gamma$  pulse-shape discrimination of liquid scintillators based on linear alkyl benzene. *JINST* **7**, C03047 (2012).  
DOI: [10.1088/1748-0221/7/03/c03047](https://doi.org/10.1088/1748-0221/7/03/c03047)

- [7] R. Massarczyk, R. Schwengner, F. Dönau, E. Litvinova, G. Rusev, R. Beyer, R. Hannaske, A. R. Junghans, M. Kempe, J. H. Kelley, **T. Kögler**, K. Kosev, E. Kwan, M. Marta, A. Matic, C. Nair, R. Raut, K. D. Schilling, G. Schramm, D. Stach et al. Electromagnetic dipole strength of  $^{136}\text{Ba}$  below the neutron separation energy. *Phys. Rev. C* **86**, 014319 (2012).  
DOI: [10.1103/physrevc.86.014319](https://doi.org/10.1103/physrevc.86.014319)
- [8] R. Beyer, E. Birgersson, Z. Elekes, A. Ferrari, E. Grosse, R. Hannaske, A. R. Junghans, **T. Kögler**, R. Massarczyk, A. Matić, R. Nolte, R. Schwengner und A. Wagner. Characterization of the neutron beam at nELBE. *Nucl. Instr. and Meth. A* **723**, 151–162 (2013).  
DOI: [10.1016/j.nima.2013.05.010](https://doi.org/10.1016/j.nima.2013.05.010)
- [9] R. Hannaske, Z. Elekes, R. Beyer, A. Junghans, D. Bemmerer, E. Birgersson, A. Ferrari, E. Grosse, M. Kempe, **T. Kögler**, M. Marta, R. Massarczyk, A. Matic, G. Schramm, R. Schwengner und A. Wagner. Neutron total cross section measurements of gold and tantalum at the nELBE photoneutron source. *Eur. Phys. J. A* **49** (2013).  
DOI: [10.1140/epja/i2013-13137-1](https://doi.org/10.1140/epja/i2013-13137-1)
- [10] A. R. Junghans, R. Beyer, E. Grosse, R. Hannaske, **T. Kögler**, R. Massarczyk, R. Schwengner und A. Wagner. Transmutation of high-level radioactive waste - Perspectives. In E. Chiaveri (Editor), *Proceedings of the ERINDA Workshop*, Band 2014-002, Seiten 175–181 (2013).  
<https://indico.cern.ch/event/251800/material/1/0.pdf>
- [11] **T. Kögler**, R. Beyer, E. Birgersson, R. Hannaske, A. R. Junghans, R. Massarczyk, A. Matic, A. Wagner und K. Zuber. Light yield and n- $\gamma$  pulse-shape discrimination of liquid scintillators based on linear alkyl benzene. *Nucl. Instr. and Meth. A* **701**, 285–293 (2013).  
DOI: [10.1016/j.nima.2012.10.059](https://doi.org/10.1016/j.nima.2012.10.059)
- [12] **T. Kögler**, R. Beyer, R. Hannaske, A. Junghans, R. Massarczyk und A. Wagner. Fission Experiments at nELBE. *Phys. Proc.* **47**, 178–183 (2013). Scientific Workshop on Nuclear Fission Dynamics and the Emission of Prompt Neutrons and Gamma Rays, Biarritz, France, 28-30 November 2012.  
DOI: [10.1016/j.phpro.2013.06.026](https://doi.org/10.1016/j.phpro.2013.06.026)

- [13] **T. Kögler**, R. Beyer, R. Hannaske, A. R. Junghans, R. Massarczyk, R. Schwengner und A. Wagner. The *n*ELBE (n,fis) experiment. In E. Chiaveri (Editor), *ERINDA workshop Proceedings*, Band 2014-002, Seiten 25–30, Geneva, Switzerland. CERN, CERN (2013).  
<https://indico.cern.ch/event/251800/material/1/0.pdf>
- [14] R. Massarczyk, G. Schramm, A. R. Junghans, R. Schwengner, M. Anders, T. Belgya, R. Beyer, E. Birgersson, A. Ferrari, E. Grosse, R. Hannaske, Z. Kis, **T. Kögler**, K. Kosev, M. Marta, L. Szentmiklósi, A. Wagner und J. L. Weil. Electromagnetic dipole strength up to the neutron separation energy from  $^{196}\text{Pt}(\gamma,\gamma')$  and  $^{195}\text{Pt}(n,\gamma)$  reactions. *Phys. Rev. C* **87**, 044306 (2013).  
DOI: [10.1103/physrevc.87.044306](https://doi.org/10.1103/physrevc.87.044306)
- [15] R. Beyer, R. Schwengner, R. Hannaske, A. R. Junghans, R. Massarczyk, M. Anders, D. Bemmerer, A. Ferrari, A. Hartmann, **T. Kögler**, M. Röder, K. Schmidt und A. Wagner. Inelastic scattering of fast neutrons from excited states in  $^{56}\text{Fe}$ . *Nucl. Phys. A* **927**, 41–52 (2014).  
DOI: [10.1016/j.nuclphysa.2014.03.010](https://doi.org/10.1016/j.nuclphysa.2014.03.010)
- [16] R. Hannaske, D. Bemmerer, R. Beyer, E. Birgersson, E. Grosse, A. Hartmann, A. R. Junghans, M. Kempe, **T. Kögler**, K. Kosev, M. Marta, R. Massarczyk, A. Matic, K.-D. Schilling, G. Schramm, R. Schwengner, M. Sobiella, D. Stach, A. Wagner und D. Yakorev. Towards a precision measurement of the photodissociation of the deuteron at energies relevant to Big Bang nucleosynthesis. In *Proceedings of the 11th Symposium on Nuclei in the Cosmos (NIC XI), Heidelberg, Germany, 19.-23.07.2010*, Band PoS(NIC XI), Nr. 090, Seiten 1–5 (2014).
- [17] A. R. Junghans, R. Beyer, Z. Elekes, E. Grosse, R. Hannaske, **T. Kögler**, R. Massarczyk, R. Schwengner und A. Wagner. Fast-neutron Induced Reactions at the nELBE Time-of-flight Facility. *Nucl. Data Sheets* **119**, 349–352 (2014).  
DOI: [10.1016/j.nds.2014.08.096](https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.08.096)
- [18] **T. Kögler**, R. Beyer, Z. Elekes, R. Hannaske, A. Junghans, R. Massarczyk, R. Schwengner und A. Wagner. Target Characterization of Large Area Minor Actinide Layers and Fission Chamber Simulations for Fast Neutron-induced Fission Cross Section Experiments at nELBE. *Nucl. Data Sheets* **119**, 404–406 (2014).  
DOI: [10.1016/j.nds.2014.08.113](https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.08.113)

- [19] A. Makinaga, R. Massarczyk, R. Schwengner, M. Beard, F. Dönau, M. Anders, D. Bemmerer, R. Beyer, R. Hannaske, A. R. Junghans, M. Kempe, **T. Kögler**, M. Röder, K. Schmidt und A. Wagner. Dipole strength of  $^{181}\text{Ta}$  for the evaluation of the  $^{180}\text{Ta}$  stellar neutron capture rate. *Phys. Rev. C* **90**, 044301 (2014).  
DOI: [10.1103/physrevc.90.044301](https://doi.org/10.1103/physrevc.90.044301)
- [20] R. Massarczyk, R. Schwengner, F. Dönau, S. Frauendorf, M. Anders, D. Bemmerer, R. Beyer, C. Bhatia, E. Birgersson, M. Butterling, Z. Elekes, A. Ferrari, M. E. Gooden, R. Hannaske, A. R. Junghans, M. Kempe, J. H. Kelley, **T. Kögler**, A. Matic, M. L. Menzel et al. Nuclear Deformation and Neutron Excess as Competing Effects for Dipole Strength in the Pygmy Region. *Phys. Rev. Lett.* **112**, 072501 (2014).  
DOI: [10.1103/physrevlett.112.072501](https://doi.org/10.1103/physrevlett.112.072501)
- [21] R. Massarczyk, R. Schwengner und A. Junghans. Electromagnetic Dipole Strength in  $^{124,128,134}\text{Xe}$ . *Nucl. Data Sheets* **119**, 317–319 (2014).  
DOI: [10.1016/j.nds.2014.08.087](https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.08.087)
- [22] A. Junghans, R. Beyer, E. Grosse, R. Hannaske, **T. Kögler**, R. Massarczyk, R. Schwengner und A. Wagner. Fast neutron measurements at the nELBE time-of-flight facility. *Eur. Phys. J.: Web of Conferences* **93**, 02015 (2015).  
DOI: [10.1051/epjconf/20159302015](https://doi.org/10.1051/epjconf/20159302015)
- [23] **T. Kögler**, R. Beyer, A. R. Junghans, R. Massarczyk, R. Schwengner und A. Wagner. Neutron-induced Fission Measurements at the Time-of-Flight Facility nELBE. *Phys. Proc.* **64**, 150–156 (2015).  
DOI: [10.1016/j.phpro.2015.04.020](https://doi.org/10.1016/j.phpro.2015.04.020)
- [24] R. Massarczyk, R. Schwengner, D. Bemmerer, R. Beyer, R. Hannaske, A. Junghans, M. Kempe, **T. Kögler**, G. Schramm und A. Wagner. Investigation of dipole strength up to the neutron separation energy at  $\gamma\text{ELBE}$ . *Eur. Phys. J.: Web of Conferences* **93**, 01040 (2015).  
DOI: [10.1051/epjconf/20159301040](https://doi.org/10.1051/epjconf/20159301040)
- [25] R. Massarczyk, R. Schwengner, L. A. Bernstein, M. Anders, D. Bemmerer, R. Beyer, Z. Elekes, R. Hannaske, A. R. Junghans, **T. Kögler**, M. Röder, K. Schmidt, A. Wagner und L. Wagner. Dipole strength distribution of  $^{74}\text{Ge}$ . *Phys. Rev. C* **92**, 044309 (2015).  
DOI: [10.1103/physrevc.92.044309](https://doi.org/10.1103/physrevc.92.044309)

- [26] A. Vascon, N. Wiehl, J. Runke, J. Drebert, T. Reich, N. Trautmann, B. Cremer, **T. Kögler**, R. Beyer, A. R. Junghans, K. Eberhardt und C. E. Düllmann. Improving material properties and performance of nuclear targets for transmutation-relevant experiments. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **305**, 913–919 (2015).  
DOI: [10.1007/s10967-014-3916-1](https://doi.org/10.1007/s10967-014-3916-1)
- [27] R. Hannaske, D. Bemmerer, R. Beyer, E. Birgersson, A. Ferrari, E. Grosse, A. Junghans, M. Kempe, **T. Kögler**, K. Kosev, M. Marta, R. Massarczyk, A. Matic, K. Schilling, G. Schramm, R. Schwengner, A. Wagner und D. Yakorev. Measurement of the photodissociation of the deuteron at energies relevant to Big Bang nucleosynthesis. *J. Phys. Conf. Ser.* **665**, 012003 (2016).  
<http://stacks.iop.org/1742-6596/665/i=1/a=012003>
- [28] **T. Kögler**. *Bestimmung des Neutronen- und Neutronen Spaltquerschnitts von  $^{242}\text{Pu}$* . Dissertation, Technische Universität Dresden (2016).  
<http://www.hzdr.de/db/Cms?p0id=29864>
- [29] R. Massarczyk, G. Schramm, T. Belgia, R. Schwengner, R. Beyer, D. Bemmerer, Z. Elekes, E. Grosse, R. Hannaske, A. R. Junghans, Z. Kis, **T. Kögler**, C. Lorenz, K. Schmidt, L. Szentmiklósi, A. Wagner und J. L. Weil. Role of electric and magnetic dipole strength functions in the  $^{114}\text{Cd}(\gamma, \gamma')$  and  $^{113}\text{Cd}(n, \gamma)$  reactions. *Phys. Rev. C* **93**, 014301 (2016).  
DOI: [10.1103/physrevc.93.014301](https://doi.org/10.1103/physrevc.93.014301)
- [30] B. von Krosigk, M. Chen, S. Hans, A. R. Junghans, **T. Kögler**, C. Kraus, L. Kuckert, X. Liu, R. Nolte, H. M. O’Keeffe, H. W. C. Tseung, J. R. Wilson, A. Wright, M. Yeh und K. Zuber. Measurement of  $\alpha$ -particle quenching in LAB based scintillator in independent small-scale experiments. *Eur. Phys. J. C* **76** (2016).  
DOI: [10.1140/epjc/s10052-016-3959-2](https://doi.org/10.1140/epjc/s10052-016-3959-2)
- [31] **T. Kögler**, R. Beyer, M. Dietz, A. R. Junghans, C. Lorenz, S. E. Müller, T. P. Reinhardt, K. Schmidt, R. Schwengner, M. P. Takacs und A. Wagner. Fast-neutron-induced fission of  $^{242}\text{Pu}$  at nELBE. *Eur. Phys. J.: Web of Conferences* **62** (2017).  
DOI: [10.1051/epjconf/e2016-62005-3](https://doi.org/10.1051/epjconf/e2016-62005-3)

# Danksagung

*Diese Danksagung ist für alle diejenigen, die diese Arbeit ermöglicht haben.*

Ich danke ...

...Dr. Arnd Junghans und Dr. Andreas Wagner dafür, dass sie immer ein offenes Ohr für meine Fragen und Probleme hatten, ganz egal, wie beschäftigt sie gewesen sind. Dafür, dass sie mich immer unterstützt und vorangebracht haben, für ihr Vertrauen und natürlich dafür, dass sie diese sehr interessante Arbeit erst ermöglicht haben.

...Dr. Ronald Schwengner für seine Korrekturvorschläge sowohl in meinen Veröffentlichungen, als auch in dieser Arbeit. Auch für alles, was ich über Stärkefunktionen und Niveaudichten von ihm lernen durfte.

...Dr. Roland Beyer dafür, dass er der beste Kollege war, den man sich nur vorstellen kann. Dafür, dass auch er immer ein offenes Ohr für meine Fragen hatte, für seine Unterstützung im Aufbau meiner Experimente, für seine ruhige und überlegte Art, mit der er mich auf charmante Art und Weise auf meine Fehler aufmerksam gemacht hat.

...Dr. Stefan Müller für seine Unterstützung in der Durchführung der Teilchentransportrechnungen mit MCNP 6 und Fluka 2011, deren Ergebnisse leider nicht mehr in diese Arbeit einfließen konnten, aber in zukünftigen Publikationen berücksichtigt werden.

...den Operateuren und Wissenschaftlern, die am PIAF der PTB Braunschweig und am ELBE-Beschleuniger für den reibungslosen Ablauf meiner Strahlzeiten gesorgt haben.

...Manfred Sobiella, Klaus Heidel und Andreas Hartmann für die kontinuierliche Hilfe, nicht nur bei Entwicklung und Fertigung der beiden Spaltkammern und ihrer Elektronik, sondern auch im Aufbau der zahlreichen Experimente, die wir über die vielen Jahre hinweg durchgeführt haben. Die hohe Qualität unserer Messergebnisse verdanken wir zu einem großen Anteil ihnen.

...Daniela Scheibler, Jens Steiner und Paul Petring für ihre Unterstützung in jeglichen IT-Fragen, für die Erfüllung meiner zahlreichen Softwarewünsche und alles das, was ich von ihnen lernen durfte.

...Maik Görler, Daniel Stach, David Weinberger und Heiko Gude für die schnelle und unkomplizierte Art, mit der sie meine kurzfristigen Elektronik-Anfragen bearbeitet haben. Dank auch dafür, dass sie mich immer zur gemütlichen Essensrunde eingeladen haben.

... unseren Sekretärinnen Sirit Vellguth und Anne Varga dafür, dass sie die Planung unserer Dienstreisen übernommen und uns in allen organisatorischen Belangen beinahe jegliche Arbeit abgenommen haben.

... meinen früheren und aktuellen Kollegen Dr. Roland Hannaske, Dr. Ralph Massarczyk, Robert John, Tobias Reinhard, Dr. Daniel Bemmerer, Dr. Georg Schramm, Christian Lorentz, Matthias Kempe, Dr. Konrad Schmidt, Marcell Takacs, Sebastian Ulass, Dr. Tamàs Szücs, Mirco Dietz, Dr. Andrija Matic und Dr. Evert Birgersson für ihre Unterstützung bei meinen Experimenten und für die vielen schönen Stunden auf Arbeit und auf Dienstreisen, die wir miteinander verbracht haben.

... Dr. Klaus Eberhardt, Dr. Alessio Vascon und Jörg Runke von der Johannes Gutenberg-Universität Mainz für die Herstellung unserer Aktinoidenproben und der Möglichkeit, die Spaltkammer in ihrem Radio-Chemischen-Kontrollbereich zusammen zu bauen.

... Dr. Ralf Nolte dafür, dass ich mir die H19-Spaltkammer für die Durchführung des in dieser Arbeit diskutierten Experiments leihen durfte. Ohne dieses Transfergerät wäre die Messung nicht durchführbar gewesen. Danke auch für alles, was ich von ihm über Neutronendetektion lernen durfte. Vor allem aber für das großartige Jobangebot, welches er mir gemacht hat.

... Dr. Franz-Josef Hamsch dafür, dass er mich auf die THEORY-Workshops der Europäischen Kommission eingeladen hat, bei denen ich viel über die Kernspaltung gelernt habe und vielen ausgezeichneten Wissenschaftlern auf diesem Gebiet begegnen durfte. Für die Korrektur und Bewertung dieser Arbeit, sowie seine Bereitschaft an meinem Rigorosum und meiner Disputation teilzunehmen, danke ich ihm ebenfalls.

... allen weiteren Mitgliedern meiner Promotionskommission bestehend aus Prof. Dr. Carsten Timm, Prof. Dr. Arno Straessner, Prof. Dr. Thomas Cowan und Prof. Dr. Kai Zuber ebenfalls für ihre Begutachtung dieser Arbeit. Prof. Zuber gebührt hier besonderer Dank, da er mich seit dem Beginn meiner Diplomarbeitszeit immer unterstützt und sich über die Jahre eine sehr gute Zusammenarbeit zwischen ihm, seinen Doktoranden und unserer gesamten Abteilung etabliert hat.

... auch Prof. Eckard Grosse an dieser Stelle, da er sich immer kritisch mit meiner Arbeit auseinandergesetzt hat und mir viele positive Impulse geben konnte. In vielen physikalischen Diskussionen und Vorträgen konnte ich viel über Kernphysik und deren Geschichte von ihm lernen.

... Paula Salvador-Castiñeira für die gute Zusammenarbeit, dem ständigen Austausch unserer Erfahrungen und Erkenntnisse in der Bestimmung von Spaltquerschnitten und die Bereitstellung ihrer Messergebnisse zur Spaltfragmentanisotropie.

Meinen Eltern, meiner Schwester, meinen Großeltern, meinen Schwiegereltern, sowie meiner gesamten Familie danke ich in besonderem Maße dafür, dass sie mich zu jeder Zeit meines Lebens unterstützt und motiviert haben das zu tun, was mir Freude bereitet und zu jeder Zeit den Rückhalt in meinem Leben bilden.

Der größte Dank gebührt meiner Verlobten Monique Kunath, die mit ihrer bedingungslosen Liebe zusammen mit meinen beiden Kindern Sascha und Niklas den Mittelpunkt meines Lebens darstellt. Auf sie kann ich mich jederzeit verlassen. Danke dafür, dass du an meiner Seite bist und dich in den letzten Jahren (zu) oft meinen Interessen untergeordnet hast. Ihr drei seid das Wichtigste in meinem Leben.

# Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche kenntlich gemacht. Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die vorliegende Arbeit wurde am Helmholtz-Zentrum Dresden - Rossendorf unter der wissenschaftlichen Leitung von Prof. Dr. Thomas Cowan und Dr. Arnd R. Junghans angefertigt. Mit dem Einreichen an der Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften der Technischen Universität Dresden erkenne ich die bestehende Promotionsordnung vom 23.02.2011 an.

Toni Kögler

Dresden, 23. März 2017