

Kurzbericht (Teil I)

zu einem BMBF-Fördervorhaben im Rahmen von
FORKA – Forschung für den Rückbau kerntechnischer Anlagen

Forschungsfeld:
Zerstörungsfreie Analyse und Deklaration von (Alt-)Abfällen

QUANTOM Quantitative Analyse toxischer und nicht-toxischer Materialien

Projektpartner



AiNT GmbH



Framatome GmbH



Fraunhofer
INT

Fraunhofer INT

Projektkoordinator:

Dr. Laurent Coquard, Framatome

Tel: 09131 90095074

E-Mail: laurent.coquard@Framatome.com

Autoren:

Dr. Laurent Coquard (Projektleiter, Framatome)

Dr. Bo Fu (Projektleiter, AiNT)

Dr. Theo Köble (Projektleiter, Fraunhofer INT)

Dokumentennummer:

Kurzbericht_QUANTOM_Teil_I

Datum:

30.10.2023

Radioaktive Abfälle müssen im Rahmen eines Endlagerungsverfahrens sachgerecht konditioniert und entsorgt werden. Dazu müssen die Abfälle vom Verursacher radiologisch und stofflich charakterisiert werden. Gerade bei Altabfall werden häufig unzureichende und unstimmgige Abfalldeklarationen festgestellt. Bislang erfolgt eine Überprüfung zur vollständigen endlagergerechten Charakterisierung radioaktiver Altabfälle meist durch eine aufwendige zeit- und kostenintensive Öffnung der Fässer, welche in Folge eine unnötige Strahlenexposition des Fachpersonals und eine Volumenvergrößerung der Altabfälle bedeuten kann.

Die Framatome GmbH (Framatome), die Aachen Institute for Nuclear Training GmbH (AiNT) und das Fraunhofer-Institut für Naturwissenschaftlich-Technische Trendanalysen (FINT) entwickelten im Rahmen eines von FORKA geförderten Projektes im Zeitraum von 09/2018 bis 06/2023 eine innovative Fassmessanlage namens QUANTOM – Quantitative Analyse toxischer und nicht-toxischer Materialien.

Ziel des Forschungs- und Entwicklungsvorhabens war es, das Verfahren der prompten und verzögerten Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (P&DGNA) zur stofflichen Charakterisierung zu entwickeln, zu erproben und für Ablieferungspflichtige anwendbar zu machen. Explizit war das Primärziel die Entwicklung einer Messanlage zur stofflichen Charakterisierung von 200-l-Fässern. Durch die Messanlage kann zerstörungsfrei der messtechnische Nachweis erbracht werden, ob ein grundwassergefährdender Stoff in einem 200-l-Fass in unzulässiger Menge vorhanden ist oder nicht (Ausschlussprinzip). Das Verfahren ermöglicht es, eine mittels Stoffvektoren getätigte Beschreibung eines Abfallfasses zu verifizieren, wodurch die Nachqualifizierung von Altabfällen erleichtert wird und Kosten eingespart sowie Strahlenexpositionen reduziert werden können. Die Zielstellung des Projektes QUANTOM entspricht dem in der Fördermaßnahme „FORKA – Forschung für den Rückbau kerntechnischer Anlagen“ genannten Forschungsfeld „Zerstörungsfreie Deklaration bzw. Analyse von (Alt-)Abfällen“.

Die qualitative sowie quantitative Bestimmung von Elementanteilen in den Abfallfässern zur stofflichen Charakterisierung konditionierter Abfälle wurde mit der P&DGNA vor dem Projektbeginn weltweit nachgewiesen. Die Weiterentwicklung sowie die Anpassung dieser Technologie, hinsichtlich der Aufgabenstellung der stofflichen Deklaration konditionierter Fässer, war Ziel dieses Verbundvorhabens.

Es wurde erstmalig die Messung eines Fasses in Abhängigkeit des Drehwinkels implementiert, um eine räumliche Auflösung zu erhalten. Das Verfahren zur Massenquantifizierung ist einzigartig: es wird iterativ bezüglich der Zusammensetzung des Fasses durchgeführt, bis sich die berechnete Zusammensetzung der Partitionen nicht mehr ändert. Für die einzelnen Iterationsschritte wird basierend auf einer Diffusionsapproximation der Neutronentransportgleichung der Neutronenfluss orts- und energieaufgelöst innerhalb einer jeweiligen Partition berechnet. Hierfür wurden Algorithmen und Auswertemodelle entwickelt, die den Neutronentransport im 200-l-Fass deterministisch abbilden und physikalische Randbedingungen erfüllen.

Die bis dato entwickelten Messanlagen waren Testeinrichtungen, die nur von Wissenschaftlern/-innen bedient werden konnten. Insbesondere die Auswertung von aufgenommenen Gamma-Spektren war zeitintensiv und erforderte hohes Fachwissen um die begleitende händische Datenanalyse durchzuführen. Bei der Entwicklung von QUANTOM wurde die Messanlage anwenderfreundlich gestaltet und überaus komplexe messtechnische Auswertungen automatisiert. Diese vollständig automatisierte Multielementanalyse komplexer Prompt-Gamma-Spektren ist weltweit einzigartig und wurde im Rahmen des Projektes entwickelt und patentiert.

Damit die Messanlage Messungen an realen radioaktiven Abfallfässern zukünftig vor Ort absolvieren kann, wurde die Messanlage so designt, dass ihr Betrieb in einem mobilen Container ermöglicht wird. Hierdurch wird der Einsatz der Messanlage an dem Ort ermöglicht, an dem die die Fässer gelagert sind. Anzeigepflichtige Radioaktivtransporte werden somit zukünftig vermieden.

Die Genehmigung zum Betrieb der Messanlage QUANTOM zur Erzeugung ionisierender Strahlen (Neutronengenerator) im Strahlenschutzbauwerk der AiNT GmbH wurde durch die zuständige atomrechtliche Aufsichtsbehörde (Bezirksregierung Köln) gemäß § 12 Abs. 1 Nr. 1 des Strahlenschutzgesetzes (StrlSchG) im Jahr 2019 erteilt. Diese Genehmigung wurde im Jahr 2020 erweitert sodass die Messung und Aufbewahrung von radioaktiven Abfallfässern bis zum 3×10^9 -fache der Freigrenze möglich ist.

Die Messanlage wurde im Oktober 2020 im Strahlenschutzbauwerk von AiNT vollständig aufgebaut und in Betrieb genommen. Nach einem aufwendigen Messprogramm zur Kalibrierung und Parametrisierung begannen die Validierungskampagnen mit Referenzmaterialien verpackt in 200-l-Stahlfässern in den Jahren 2021 bis 2023. Das F&E-Programm beinhaltet die Validierung mit homogenen und inhomogenen Referenzmaterialien und realen radioaktiven Abfallfässern aus dem Bestand der öffentlichen Hand.



Die Ergebnisse der Validierung mit Referenzmaterialien wurden veröffentlicht¹. Die Innovation des Projektes QUANTOM wurde international anerkannt. Das Projekt konnte den zweiten Platz beim „Nuclear Innovation Prize“ der europäischen Kommission in der Kategorie Entsorgung Radioaktiver Abfälle in 2022 gewinnen ebenso wie den ersten Platz bei dem EDF Innovationswettbewerb „EDF Pulse Awards“ in 2023.

¹ <https://www.epj-n.org/articles/epjn/abs/2023/01/epjn220043/epjn220043.html>

Abschlussbericht (Teil II)

zu einem BMBF-Vordervorhaben im Rahmen von
FORKA – Forschung für den Rückbau kerntechnischer Anlagen

Forschungsfeld:
Zerstörungsfreie Analyse und Deklaration von (Alt-)Abfällen

QUANTOM

Quantitative Analyse toxischer und nicht-toxischer Materialien

Projektpartner



AiNT GmbH



Framatome GmbH



Fraunhofer INT

Projektkoordinator:

Dr. Laurent Coquard, Framatome

Tel: 09131 90095074

E-Mail: laurent.coquard@Framatome.com

Autoren:

Dr. Laurent Coquard (Projektleiter, Framatome)

Dr. B. Fu (Projektleiter, AiNT)

Dr. Theo Köble (Projektleiter, Fraunhofer INT)



Dokumentennummer:

Abschlussbericht_QUANTOM_Teil_II

Datum:

29.11.2023

Qualitätssicherung der Verbundpartner

Autoren	Institution	Datum	Unterschrift
Dr. Laurent Coquard Projektleiter Projektkoordinator	Framatome		Digital unterschrieben von COQUARD Laurent Datum: 2023.12.08 09:15:51 +01'00'
Dr. Bo Fu Projektleiter	AiNT	08.12.2023	
Dr. Theo Köble Projektleiter	FINT	08.12.2023	Theo Koeble <small>Digital unterschrieben von Theo Koeble Datum: 2023.12.08 13:01:30 +01'00'</small>

Mit der handschriftlichen Unterzeichnung auf der Qualitätssicherungsseite versichern die bei der Erstellung und bei der Qualitätssicherung verantwortlichen Mitarbeiter/-innen, die vorliegende Fassung des Abschlussberichtes nach bestem Wissen und Gewissen sowie nach guter wissenschaftlicher Praxis und frei von internen oder externen Ergebnisweisungen erstellt und geprüft zu haben.

Alle Inhalte dieser wissenschaftlich-technischen Abschlussbericht, insbesondere Texte, prozedurale Verfahren und Grafiken, sind urheberrechtlich geschützt (Copyright 2023). Die Urheberrechte liegen bei der Aachen Institute for Nuclear Training GmbH, Cockerillstraße 100, 52222 Stolberg (Rhld.), Deutschland, der Framatome GmbH, Paul Gossen Str. 100, 91502 Erlangen, Deutschland und dem Fraunhofer-Institut für Naturwissenschaftlich-Technische Trendanalysen, Appelsgarten 2, 53879 Euskirchen, Deutschland.

ABKÜRZUNGEN

<i>AC</i>	<i>Alternating Current (Wechselstrom)</i>
<i>AiNT</i>	<i>Aachen Institute for Nuclear Training</i>
<i>CCW</i>	<i>Counterclockwise (Gegen den Uhrzeigersinn)</i>
<i>CW</i>	<i>Clockwise (Im Uhrzeigersinn)</i>
<i>DIN</i>	<i>German Institute for Standardization (Deutsches Institut für Normung)</i>
<i>EMC</i>	<i>Electromagnetic Compatibility</i>
<i>FINT</i>	<i>Fraunhofer-Institut für Naturwissenschaftlich-Technische Trendanalysen</i>
<i>GUI</i>	<i>Graphical User Interface (Grafische Nutzeroberfläche)</i>
<i>HPGe</i>	<i>High Purity Germanium (Hochreines Germanium)</i>
<i>I&C</i>	<i>Instrumentation and Control</i>
<i>IEC</i>	<i>International Electrotechnical Commission</i>
<i>P&DGNAA</i>	<i>Prompte und verzögerte Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse</i>
<i>PL</i>	<i>Performance Level</i>
<i>SK</i>	<i>Schrittkette</i>
<i>MW</i>	<i>Mikrowelle</i>
<i>NG</i>	<i>Neutronengenerator</i>
<i>UDP</i>	<i>User Data Protocol</i>
<i>WAK</i>	<i>Winkelringadapterkäfig</i>
<i>EWB</i>	<i>Eisenwerk Bassum GmbH</i>
<i>MMS</i>	<i>Maschinen-Meyer GmbH & Co. KG</i>

Zusammenfassung

Radioaktive Abfälle müssen im Rahmen eines Endlagerungsverfahrens sachgerecht konditioniert und entsorgt werden. Dazu müssen die Abfälle vom Verursacher radiologisch und stofflich charakterisiert werden. Gerade bei Altabfall werden häufig unzureichende und unstimmgige Abfalldeklarationen festgestellt. Bislang erfolgt eine Überprüfung zur vollständigen endlagerechten Charakterisierung radioaktiver Altabfälle meist durch eine aufwendige Zeit- und kostenintensive Öffnung der Fässer, welche in Folge eine unnötige Strahlenexposition des Fachpersonals und eine Volumenvergrößerung der Altabfälle bedeuten kann.

Die Framatome GmbH (Framatome), die Aachen Institute for Nuclear Training GmbH (AiNT) und das Fraunhofer-Institut für Naturwissenschaftlich-Technische Trendanalysen (FINT) entwickelten im Rahmen eines von FORKA geförderten Projektes im Zeitraum von 09/2018 bis 06/2023 eine innovative Fassmessanlage namens QUANTOM – Quantitative Analyse toxischer und nicht-toxischer Materialien. Explizit war das Primärziel die Entwicklung einer Messanlage zur stofflichen Charakterisierung von 200-l-Fässern. Durch die Messanlage kann zerstörungsfrei der messtechnische Nachweis erbracht werden, ob ein grundwasserrelevanter Stoff in einem 200-l-Fass in unzulässiger Menge vorhanden ist oder nicht (Ausschlussprinzip). Das Verfahren ermöglicht es, eine mittels Stoffvektoren getätigte Beschreibung eines Abfallfasses zu verifizieren, wodurch die Nachqualifizierung von Altabfällen erleichtert wird und Kosten eingespart sowie Strahlenexpositionen reduziert werden können. Die qualitative sowie quantitative Bestimmung von Elementanteilen in den Abfallfässern zur stofflichen Charakterisierung konditionierter Abfälle wurde mit der P&DGNAA vor dem Projektbeginn weltweit nachgewiesen. Die Weiterentwicklung sowie die Anpassung dieser Technologie, hinsichtlich der Aufgabenstellung der stofflichen Deklaration konditionierter Fässer, war Ziel dieses Verbundvorhabens.

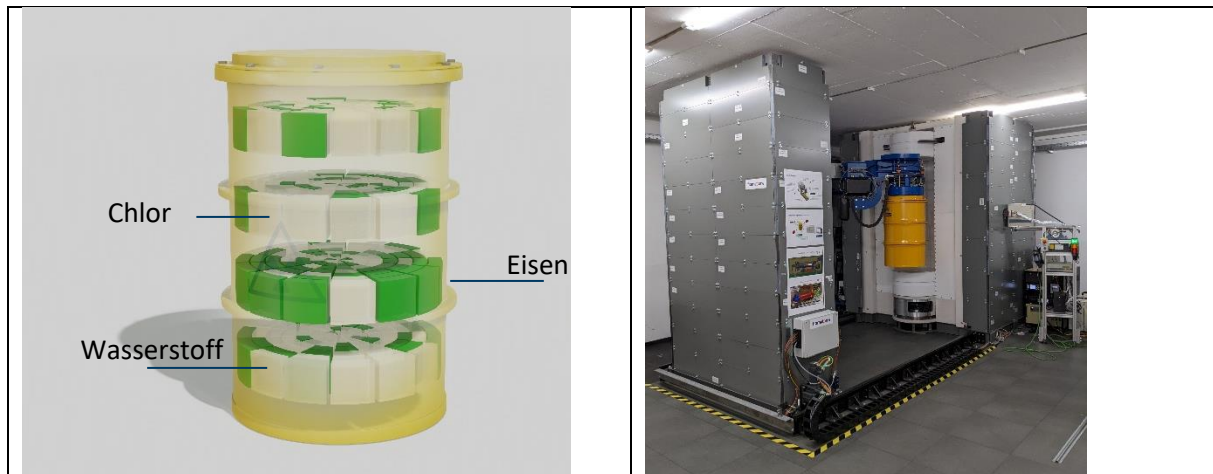
Es wurde erstmalig die Messung eines Fasses in Abhängigkeit des Drehwinkels implementiert, um eine räumliche Auflösung zu erhalten. Das Verfahren zur Massenquantifizierung ist einzigartig: es wird iterativ bezüglich der Zusammensetzung des Fasses durchgeführt, bis sich die berechnete Zusammensetzung der Partitionen nicht mehr ändert. Für die einzelnen Iterationsschritte wird basierend auf einer Diffusionsapproximation der Neutronentransportgleichung der Neutronenfluss orts- und energieaufgelöst innerhalb einer jeweiligen Partition berechnet. Hierfür wurden Algorithmen und Auswertemodelle entwickelt, die den Neutronentransport im 200-l-Fass deterministisch abbilden und physikalische Randbedingungen erfüllen.

Die bis dato entwickelten Messanlagen waren Testeinrichtungen, die nur von Wissenschaftlern/-innen bedient werden konnten. Insbesondere die Auswertung von aufgenommenen Gamma-Spektren war zeitintensiv und erforderte hohes Fachwissen, um die begleitende händische Datenanalyse durchzuführen. Bei der Entwicklung von QUANTOM wurde die Messanlage anwenderfreundlich gestaltet und überaus komplexe messtechnische Auswertungen automatisiert. Diese vollständig automatisierte Multielementanalyse komplexer Prompt-Gamma-Spektren ist weltweit einzigartig und wurde im Rahmen des Projektes entwickelt und patentiert.

Damit die Messanlage Messungen an realen radioaktiven Abfallfässern zukünftig vor Ort absolvieren kann, wurde die Messanlage so designt, dass ihr Betrieb in einem mobilen Container möglich wird. Hierdurch wird der Einsatz der Messanlage an dem Ort ermöglicht, an dem die Fässer gelagert sind. Anzeigepflichtige Radioaktivtransporte werden somit zukünftig vermieden. Die Genehmigung zum Betrieb der Messanlage QUANTOM zur Erzeugung ionisierender Strahlen (Neutronengenerator) im Strahlenschutzbauwerk der AiNT GmbH wurde durch die zuständige atomrechtliche Aufsichtsbehörde

(Bezirksregierung Köln) gemäß § 12 Abs. 1 Nr. 1 des Strahlenschutzgesetzes (StrlSchG) im Jahr 2019 erteilt. Diese Genehmigung wurde im Jahr 2020 erweitert, sodass die Messung und Aufbewahrung von radioaktiven Abfallfässern bis zum 3×10^9 -fachen der Freigrenze möglich ist.

Die Messanlage wurde im Oktober 2020 im Strahlenschutzbauwerk von AiNT vollständig aufgebaut und in Betrieb genommen. Nach einem aufwendigen Messprogramm zur Kalibrierung und Parametrisierung begannen die Validierungskampagnen mit Referenzmaterialien verpackt in 200-l-Stahlfässern in den Jahren 2021 bis 2023. Das F&E-Programm beinhaltet die Validierung mit homogenen und inhomogenen Referenzmaterialien und realen radioaktiven Abfallfässern aus dem Bestand der öffentlichen Hand.



Die erfolgreichen Ergebnisse der Validierung mit Referenzmaterialien wurden veröffentlicht. Die Innovation des Projektes QUANTOM wurde international anerkannt. Das Projekt konnte den 2. Platz beim „Nuclear Innovation Prize“ der europäischen Kommission in der Kategorie Entsorgung Radioaktiver Abfälle in 2022 gewinnen ebenso wie den ersten Platz bei dem EDF Innovationswettbewerb „EDF Pulse Awards“ in 2023.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung.....	4
Zielsetzung des Verbundvorhabens	9
Stand von Wissenschaft und Technik und bisherigen Arbeiten.....	9
Bisherige Arbeiten der Projektbeteiligten.....	11
Projektspezifische Arbeitsprogramme	12
1. AP1: Anlagenauslegung, Konstruktion und Detailengineering	13
1.1. Design der Messanlage.....	13
1.2. Sonderkonstruktion: Winkelringadapaterkäfig (WAK).....	20
1.3. Sonderkonstruktion: Instrumentierungsfass.....	20
1.4. Sonderkonstruktion: Antiverkippungssystem	21
1.5. Sonderkonstruktion: Zentrierteller	21
1.6. Auslegung Sondercontainer	23
2. AP2: Strahlenschutzkonzept inkl. Abschirm- und Aktivierungsberechnungen	24
3. AP3: Nuklearphysikalische Simulation inkl. Validierung	26
3.1. Simulationscode SPARC für Neutronentransportberechnung	26
4. AP4: Genehmigungsverfahren für den Betrieb der Messanlage	29
5. AP5: Softwareentwicklung für Betrieb und Messdatenauswertung.....	30
5.1. Framatome Anlagesteuerung.....	30
5.1.1. Anforderungen an die Sicherheitseinrichtungen	31
5.1.2. Allgemeine Bemerkungen	32
5.1.3. Anlagenbilder	33
5.1.4. Beschreibung der Sektornummerierung.....	36
5.1.5. Betriebsarten.....	37
5.1.6. Input für die Datenbank	39
5.2. AiNT Steuerungs- und Auswertesoftware	40
5.3. FINT Steuerungs- und Auswertesoftware	40
5.4. Schnittstelle zwischen den Komponenten	41
5.5. Automatisierte Spektrenauswertung.....	43
5.5.1. Verfahrensdarstellung.....	43
5.5.2. Initiale Untergrundabschätzung und Peak-Identifikation	44
5.5.3. Erzeugung der Region of Interest (RoI)	45
5.5.4. Peak-Fitting auf Summenspektren	45

5.5.5.	Analyse der Einzelspektren	46
5.5.6.	Peak-Zuordnung	46
5.5.7.	Elementidentifikation und Verifikation	46
5.6.	Iterative Massenrekonstruktion (IMR)	47
5.6.1.	Grundlage der Massenrekonstruktion	47
5.6.2.	Softwarelösung zur iterativen Auswertung - IMR	47
6.	AP6: Mathematische Methodenentwicklung	49
7.	AP7: Methode zur Identifizierung chemischer Verbindungen	52
7.1.	Softwarekonzept für Stofflistentool	53
7.2.	Entwicklungsschritte	54
7.3.	Entwicklungsstand	54
8.	AP8: Neutronenspektrometrie- und Neutronenflussmessung	55
8.1.	Konzept Neutronenflussmessung	55
8.2.	³ He-Zählrohre zur Neutronenflussmessung	56
8.2.1.	Kalibrierung der ³ He-Zählrohre	56
8.2.2.	Kalibrierung der ³ He-Zählrohre - Update	57
9.	AP9: Aufbau & Inbetriebnahme der stationären Messanlage	58
9.1.	Aufbau und Inbetriebsetzung	58
9.2.	Inbetriebnahme und Kalibrierung des Neutronengenerators	62
9.3.	Kalibrierung und Validierung der HPGe-Detektoren	64
10.	AP10: Experimentelle Validierung mit verschiedenen Matrices	67
10.1.	Validierungskampagne mit homogenen Referenzfässern	68
10.1.1.	Simulation und Berechnung der Messparameter	68
10.1.2.	Spektren Auswertung und Untergrundkorrekturverfahren	68
10.1.3.	Unsicherheitsanalyse des Auswerteverfahrens	69
10.1.4.	Massenrekonstruktion der fünf Referenzmaterialien	71
10.1.5.	Ergebnisse der Massenrekonstruktion bei Verwendung von MCNP zur Simulation des Neutronenflusses	71
10.1.6.	Ergebnisse der Massenrekonstruktion bei Verwendung von SPARC zur Simulation des Neutronenflusses	72
10.2.	Validierungskampagne mit inhomogenen Referenzfässern	73
10.2.1.	Massenrekonstruktion der unvollständig befüllten Referenzfässer	73
10.2.2.	Massenrekonstruktion der inhomogenen Materialien	74
11.	AP11: Aufbau & Inbetriebnahme der mobilen Messanlage	76
12.	AP12: Online-Neutronenflussmessung	76

12.1.	Einbau der Zählrohre	76
12.2.	Inbetriebnahme der Zählrohre.....	76
12.3.	Totzeitkorrektur für die ^3He -Zählrohre.....	77
12.4.	Gamma-Messungen mit Rospec	77
12.5.	Spaltkammer zur Bestimmung der Neutronenquellstärke	78
13.	AP13: Experimentelle Validierung mit radioaktiven Abfällen	83
14.	AP14: Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse	87
14.1.	Charakteristische Grenzen	87
15.	AP15: Datenbank.....	92
15.1.	Einleitung.....	93
15.2.	Systemvoraussetzungen.....	93
15.3.	Datenbank-Design	93
	Bekannt gewordener externer Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens	96
	Veröffentlichungen und Presse Mitteilungen	96
	Referenzen	98

Zielsetzung des Verbundvorhabens

Die Kooperationspartner Framatome GmbH (Framatome), die Aachen Institute for Nuclear Training GmbH (AiNT) und das Fraunhofer-Institut für Naturwissenschaftlich-Technische Trendanalysen (FINT) haben sich zum Ziel gesetzt, die Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (PGNAA) zur Charakterisierung radioaktiver Abfälle zu entwickeln und für Ablieferungspflichtige anwendbar zu machen. Die Zielstellung des Projektes ist dem Forschungsfeld „Zerstörungsfreie Deklaration bzw. Analyse von (Alt-)Abfällen“ zuzuordnen. Innerhalb des Projektes wird die Messanlage QUANTOM® für die zerstörungsfreie Überprüfung der stofflichen Beschreibung aufgebaut und erprobt. QUANTOM® wird im Strahlenschutzbauwerk von AiNT aufgebaut und getestet. Später wird die Messanlage in einen Stahlblechcontainer integriert. Dies ermöglicht den Einsatz der Messanlage direkt dort, wo die Altabfälle gelagert oder konditioniert werden. Durch die raum aufgelöste stoffliche Analyse von 200-l-Fässern können im Endlagerungsverfahren KONRAD getätigte stoffliche Beschreibungen von Abfallprodukten verifiziert und einfach ergänzt werden, wodurch die Nachqualifizierung von Altabfällen erleichtert wird und die Kosten für die nukleare Entsorgung reduziert werden. Anhand der Möglichkeit Abfallfässer mittels QUANTOM® zerstörungsfrei und ohne Neuverpackung zu analysieren wird die Strahlenexposition des Betriebspersonals im Vergleich zu einer zerstörenden Prüfung stark vermindert und eine Vergrößerung des Abfallvolumens vermieden. Der Tätigkeitsschwerpunkt von Framatome liegt in der konstruktiven Entwicklung und dem Bau und Betrieb der Messanlage. Die Zielstellung von AiNT liegt auf der Erforschung und Entwicklung von neuen Methoden und Softwarelösungen für die PGNAA von großvolumigen Proben. Der Projektfokus von FINT liegt in der Messung des Neutronenflusses und des Neutronenspektrums innerhalb und außerhalb der Messanlage.

Stand von Wissenschaft und Technik und bisherigen Arbeiten

Das physikalische Grundprinzip, auf dem das in diesem Projekt zu entwickelnde Messverfahren beruht, ist die prompte und verzögerte Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (P&DGNA). Die verzögerte Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (DGNA) ist ein weltweit etabliertes, zerstörungsfreies radioanalytisches Verfahren zur simultanen Bestimmung von Spurenelementen in kleinen Probenmengen, das bei einer Vielzahl wissenschaftlicher und technischer Anwendungen genutzt wird. Die DGNA beruht auf der Erzeugung radioaktiver Isotope durch Kernreaktionen mit thermischen oder schnellen Neutronen und der Messung der bei ihrem radioaktiven Zerfall entstehenden charakteristischen verzögerten Gamma-Strahlung. Die Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (PGNAA) ist eine Weiterentwicklung der konventionellen DGNA, die auf dem gamma-spektrometrischen Nachweis der quasi-simultan zu der neutroneninduzierten Kernreaktion prompt emittierten Gamma-Strahlung beruht. Insofern stellt die PGNAA, im Gegensatz zur DGNA, keine Anforderung an die Halbwertszeit des gebildeten Aktivierungsprodukts, wodurch die Anzahl der nachweisbaren Spurenelemente erheblich erweitert wird. Das Prinzip der P&DGNA ist in Abbildung 1 schematisch dargestellt. Die Identifizierung und Quantifizierung der Elemente erfolgt mit Hilfe aktueller Datenbanken zur neutroneninduzierten prompten und verzögerten Gamma-Strahlung.

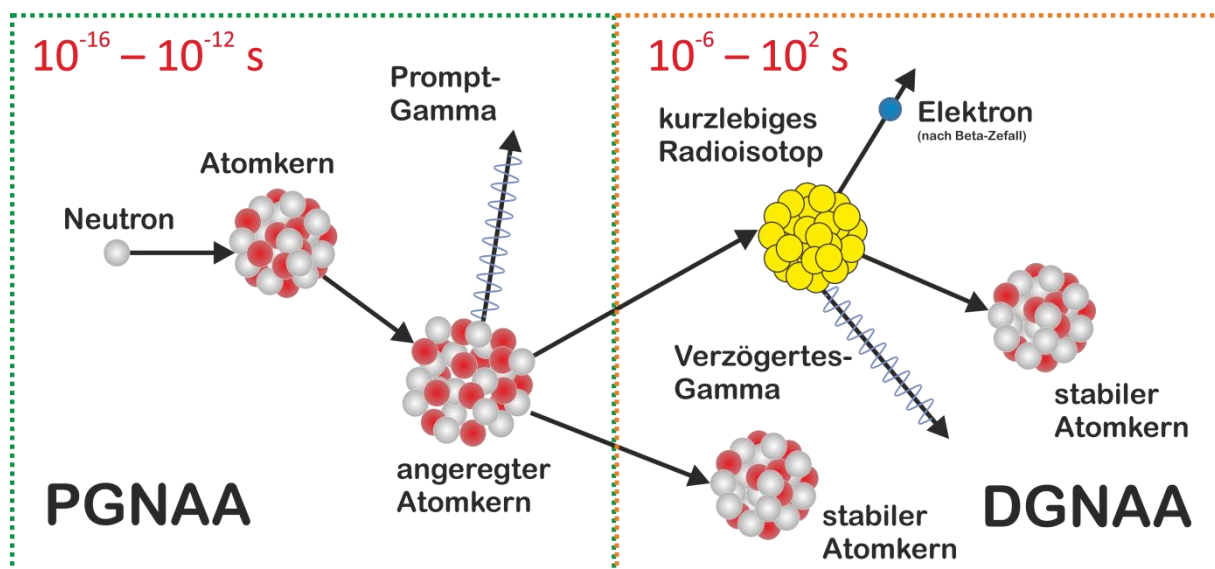


Abbildung 1: Prinzip der P&DGNAA. Die Zeitfenster (grün und orange) geben die durchschnittliche Dauer für die jeweiligen Kernprozesse an.

Die ersten systematischen Experimentalreihen zur Bestimmung von kernphysikalischen Daten für die Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analysen (PGNAA) begannen Mitte der 1960er Jahre, als das Massachusetts Institute of Technology (MIT) gammaspektrometrische Messungen für 75 Elemente durchführte. Jahrzehntlang waren diese Erkenntnisse bzw. die Daten aus vereinzelt Experimentalreihen die Referenz für alle weiteren Neutronenaktivierungsanalysen. Unstimmigkeiten zwischen den Daten der verschiedenen Experimentalreihen führten jedoch dazu, dass sich die PGNAA zunächst nicht als analytisches Verfahren durchsetzen konnte. Das Kompendium „Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis with Neutron Beams“ von Herausgeber G. Molnar aus dem Jahr 2004 dokumentierte erstmalig umfangreiche nukleare Daten, die auf der Grundlage von vielen Jahren Forschung am Forschungsreaktor in Budapest erhoben wurden. Die Gammaspektren wurden für eine Vielzahl von reinen Elementen mit einem Compton Suppressed HPGe-Detektor aufgenommen, wobei die Reinstoffe mit einem thermischen Neutronenstrahl aus dem Forschungsreaktor bestrahlt wurden. Insbesondere die höhere Güte der nuklearen Daten, gewonnen an PGNAA Messeinrichtungen am Forschungsreaktor in Budapest, führte dazu, dass die PGNAA heute eins der präzisesten Analyseverfahren für Spurenverunreinigung ist. Durch ein Projekt der IAEA wurde im Jahre 2007 eine konsolidierte Datenbank erstellt [18]. Vorangegangene Veröffentlichungen der IAEA fokussierten sich immer nur auf die Daten für spezifische Anwendungen der PGNAA, wie z.B. in der Exploration [16][17]. Die Elementbestimmung mittels PGNAA an kleinen Materialproben erfolgt heutzutage hauptsächlich mittels thermischer bzw. kalter Neutronenstrahlen, die durch Forschungsreaktoren, wie z.B. in Budapest, Garching (FRMII) und Delft erzeugt werden.

Die Neutronenaktivierungsanalyse von großvolumigen Proben ist jedoch ein Forschungsgebiet, dem sich nur wenige Institutionen widmen. So beschäftigt sich zum Beispiel die Technische Universität in Delft mit dem Thema großvolumige Körper durch mehrere kollimierte gammaspektrometrische Messungen zu charakterisieren. Die Dissertation von Hendrik Willen Baas mit dem Titel „Neutron Activation Analysis of Inhomogeneous Large Samples“ aus dem Jahr 2004 dokumentiert die analytischen Ansätze und die durchgeführten Experimente [2]. Jedoch sind die Erkenntnisse aus diesen Forschungen nur teilweise übertragbar, da es sich ausschließlich um die verzögerte Gamma-

Neutronen-Aktivierungs-Analyse (DGNA) handelt und zur Bestrahlung der Probe ausschließlich thermische Neutronen aus einem Forschungsreaktor verwendet worden sind. Bei QUANTOM wird das Messgut mit schnellen Neutronen mit einer Anfangsenergie von 2,45 MeV bestrahlt und primär das prompt Gamma-Signal ausgewertet.

Der PGNA von großvolumigen Körpern ohne eine materialspezifische Effizienzkalibrierung widmen sich auch die Veröffentlichungen von J. P. Holloway und H. Akkurt mit dem Titel „The fixed point formulation for large sample PGNA“ [3][4]. Im Gegensatz zu dieser analytischen Vorgehensweise unterscheidet sich der Ansatz von QUANTOM im Wesentlichen durch:

- Eine virtuelle Partitionierung der Probe, wobei durch das Bilden von Partitionen eine inhomogene Zusammensetzung in der Probe zugelassen wird.
- Die Durchführung einer Mehrzahl an orts aufgelösten Messungen der einzelnen Partitionen.
- Die gemeinsame Auswertung dieser Mehrzahl an Messungen mittels Berechnung der partitionsspezifischen Elementmassen als Lösung eines linearen Gleichungssystems.
- Die zusätzliche messtechnische Bestimmung des totalen Neutronenflusses zur Bestimmung absoluter Ergebnisse für die partitionsspezifischen Elementmassen.

Die PGNA kommt in den folgenden industriellen Anwendungen derzeit zum Einsatz bzw. wird für diese anforderungsgerecht entwickelt:

- Exploration von Öl- und Gaslagerstätten und anderen Rohstoffvorkommen,
- Qualitätskontrolle von Massenströmen im Bergbau oder der Zementindustrie [11][12],
- Analyse von sekundären Rohstoffen (Recyclingmaterialien),
- Identifikation von Sprengstoff und chemischen Kampfstoffen sowie Kampfmittelräumung von Flächen,
- Analyse von Frachtcontainern zwecks Einfuhr- und Ausfuhrkontrollen,
- Korrosionsfortschritt von stahlarmierten Betonstrukturen [13][14][15].

Die Heterogenität der Anwendungsfelder der PGNA gibt einen guten Einblick in die hohe wirtschaftliche Verwertbarkeit und das technische Potential der Technik, wobei berücksichtigt werden muss, dass für viele Anwendungsbereiche die Entwicklungen noch nicht abgeschlossen sind und dass der monetäre Einsatz, der sich in den Entwicklungsbudgets spiegelt, stark voneinander unterscheiden. Die größten Fortschritte wurden in den letzten fünf Jahren in der Exploration von Öl- und Gaslagerstätten durch die Fa. Schlumberger N.V. erzielt, was direkt auf die hohen bereitgestellten F&E-Budgets zurückzuführen ist [8][9]. Durch diese Entwicklungen hat die Fa. Schlumberger das heute wirksamste, auf der PGNA basierende Verfahren, zur Erkundung von Öl- und Gaslagerstätten entwickelt. Im Gegensatz zu der Analyse von Kleinstproben am Forschungsreaktor stellt die reaktorunabhängige P&DGNA an großvolumigen Objekten, wie z.B. einem 200-l-Abfallfass, ein neues Konzept in der Analytik dar.

Bisherige Arbeiten der Projektbeteiligten

In den Jahren 2007 bis 2010 wurde eine erste Testeinrichtung in der Arbeitsgruppe von Dr. Eric Mauerhofer am IEK-6 des Forschungszentrums Jülich zur Charakterisierung von Proben unterschiedlicher Zusammensetzung bis zu einem Volumen von 50 Litern aufgebaut und validiert [5]. Die Dissertation von Herrn Dr. Kettler belegte erstmalig die Leistungsfähigkeit der P&DGNA mittels

eines gepulsten 14 MeV Neutronengenerators und einer Bestrahlungskammer aus Graphit (Machbarkeitsstudie).

In den Jahren 2011 bis 2015 wurde, ebenfalls im Forschungszentrum Jülich, die Messanlage durch Herrn Dr. Havenith hochskaliert und eine erste Testeinrichtung zur zerstörungsfreien Identifizierung und Quantifizierung von wassergefährdenden Inhaltsstoffen in 200-l-Abfallfässern, namens MEDINA¹ (Multi-Element Detection based on Instrumental Neutron Activation), aufgebaut und ein angepasstes Messverfahren entwickelt [6] (siehe Abbildung 2).



Abbildung 2: MEDINA-Messanlage zur stofflichen Charakterisierung von radioaktiven Abfällen verpackt in 200-l-Fässern (Bildquelle Forschungszentrum Jülich GmbH).

Die Entwicklung und Errichtung der MEDINA-Messanlage basiert auf den Erkenntnissen, die seitens Herrn Dr. Kettler in der vorangegangenen Machbarkeitsstudie erzielt wurden. Das innovative Messverfahren basiert auf der zyklischen Neutronenbestrahlung eines 200-l-Fasses in einer Bestrahlungskammer und der Analyse der hierdurch induzierten prompten und verzögerten Gamma-Strahlung (P&DGNA). Zusammenfassend wurde die technologische Machbarkeit, eine Elementquantifizierung mittels P&DGNA durchführen zu können, in den bereits zitierten und nachfolgend aufgeführten Dissertationen [5][6] gezeigt.

Projektspezifische Arbeitsprogramme

Das Projekt hatte eine Laufzeit von ursprünglich 3 Jahren (vom 01.09.2018 bis 31.08.2021). Es wurde um 18 Monaten verlängert (Aufstockung im Zeitraum vom 01.09.2021 bis 28.02.2023) und schließlich kostenneutral um 4 Monaten verlängert (01.03.2023 bis 30.06.2023). Die folgenden 15 Arbeitspakete wurden ursprünglich definiert und abarbeitet:

¹ Mauerhofer E., Havenith A.: The MEDINA facility for the assay of the chemotoxic inventory of radioactive waste packages, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, ISSN 0236-5731, 08. Juni 2014, <http://link.springer.com/article/10.1007/s10967-014-3210-2>

AP1	Anlagenauslegung, Konstruktion und Detailengineering
AP2	Strahlenschutzkonzept inkl. Abschirm- und Aktivierungsberechnungen
AP3	Nuklearphysikalische Simulation inkl. Validierung
AP4	Genehmigungsverfahren für den Betrieb der Messanlage
AP5	Softwareentwicklung für Betrieb und Messdatenauswertung
AP6	Mathematische Methodenentwicklung
AP7	Methode zur Identifizierung chemischer Verbindungen
AP8	Neutronenspektrometrie- und Neutronenflussmessung
AP9	Aufbau & Inbetriebnahme der stationären Messanlage
AP10	Experimentelle Validierung mit verschiedenen Matrices
AP11	Aufbau & Inbetriebnahme der mobilen Messanlage
AP12	Online-Neutronenflussmessung innerhalb der Messkammer
AP13	Experimentelle Validierung mit rad. Abfällen
AP14	Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse
AP15	Datenbank

Tabelle 1: Arbeitspaketen des Förderprojektes QUANTOM.

Im Folgenden werden die einzelnen Arbeitspakete und ihre spezifischen Inhalte und erreichte Ziele beschrieben.

1. AP1: Anlagenauslegung, Konstruktion und Detailengineering

1.1. Design der Messanlage

Die Entwicklung des konstruktiven Designs von QUANTOM erfolgte iterativ zwischen der Konstruktion (AP1) und der entsprechenden nuklearphysikalischen Simulation (AP3). Framatome und AiNT haben bei der 3D-Konstruktion eng zusammengearbeitet und hierfür in Dateien des Programms Autodesk Inventor gemeinsamen gearbeitet. Die nuklearphysikalischen Simulationen wurden seitens AiNT mit MCNP durchgeführt und dokumentiert. AiNT hat framatome bei der Konstruktion und dem Aufbau der Messanlage unterstützt. Bei der Konstruktion der Messanlage wurden zunächst Anforderungsprofile an die jeweiligen Baugruppen festgelegt und daraus Lösungsvorschläge abgeleitet. Unter der Berücksichtigung der technischen Machbarkeit, der Ergebnisse aus vorangegangenen Simulationen sowie der Abwägung aller Vor- und Nachteile, wurde für jede Baugruppe eine passende technische Lösung gefunden. Die einzelnen Baugruppen wurden mit Hilfe des CAD-Programms Autodesk Inventor 2016 konstruiert. Anschließend wurden diese aufeinander abgestimmt und zu einem 3D-Gesamtmodell der Messanlage QUANTOM, wie in Abbildung 3 dargestellt, zusammengefügt [47][48].

Das messtechnische Basic Design der Anlage wurde durch AiNT (Neutronengenerator, HPGe Detektoren, Auswahl der Materialien für die Moderation der Neutronen, Abschirmung der Anlage etc) und FINT (Auswahl der Messgeräte zur Bestimmung des totalen Neutronenflusses) entwickelt. Das „messtechnische“ Basic Design der Anlage erfüllt die notwendigen und avisierten Anforderungen (Sensitivität, Ortsdosisleistung < 10 µSv/h, siehe Vorhabenbeschreibung).

Der Neutronengenerator befindet sich im Inneren der Moderationskammer. Bei seinem Betrieb emittiert er schnelle Neutronen mit kinetischen Energien in Megaelektronenvoltbereich. Bei der Messung wird eine Segmentierung des 200-l-Fasses in vier Höhensegmente vorgenommen. Jedes Höhensegment besteht aus 12 Winkelsegmenten, die alle einem Winkel von 30° entsprechen (Partitionen). Die Detektoren befinden sich beide zentriert auf der Höhe eines Höhensegments. Durch eine vertikale Drehung des Fasses werden die Detektoren auf die einzelnen Partitionen des Höhensegments ausgerichtet. Durch die Segmentierung in 30°-Abschnitte und die symmetrische Ausrichtung zwischen Detektoren und Neutronengenerator ist es möglich, dass zwei Partitionen zeitgleich mit ähnlichem oder gleichem Neutronenflussgradienten gemessen werden. Um zu vermeiden, dass eine Partition doppelt oder einzeln gemessen werden muss, wird nach der Messung einer Partition das Fass um 60° gedreht. Nach sechs Messungen ist ein Höhensegment vollständig gemessen und das Fass kann um ein Höhensegment nach oben verfahren werden. Die Detektoreinheit befindet sich auf einem verfahrbaren Detektorschlitten.

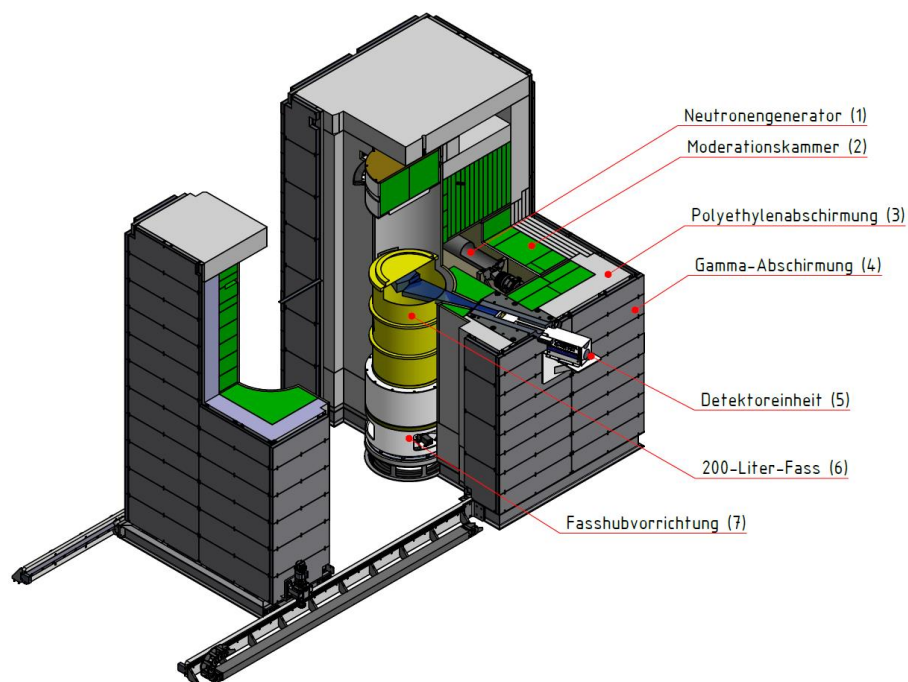


Abbildung 3: Isometrische Darstellung der Messanlage QUANTOM. Diese besteht aus einem festen und einem verfahrbaren Anlagenteil, welcher für den Fasswechsel mittels eines angetriebenen Schienensystems aufgefahren wird. Der Betrieb des Neutronengenerators ist nur bei geschlossener Anlage gestattet.

Die einzelnen Baugruppen werden nachfolgend aufgelistet. Bei der Konstruktion der Messanlage QUANTOM wurden die Zuständigkeitsbereiche für die jeweiligen Baugruppen zwischen den Kooperationspartnern aufgeteilt:

- Neutronengenerator
- Neutronengeneratorhalterung
- Moderationskammer
- Borierte Polyethylenabschirmung
- Detektoren, inkl. Nuklearelektronik
- Detektorabschirmung
 - Kollimatoren
 - PTFE Platte mit Lithium-6-Carbonat
- Detektorhalterung

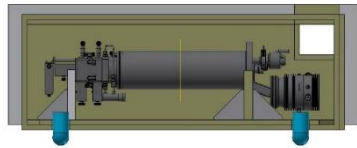
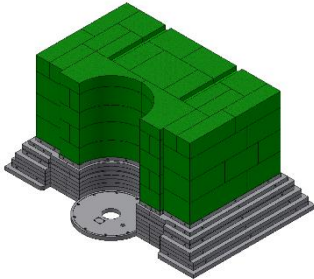
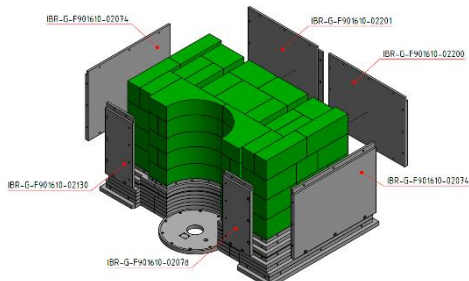
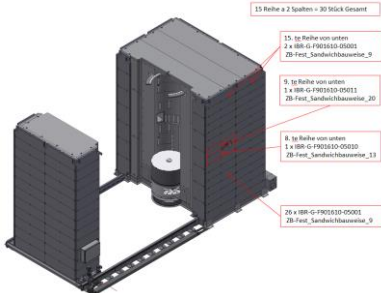
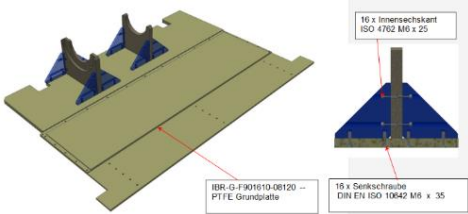
Im Verantwortungsbereich
der AiNT GmbH


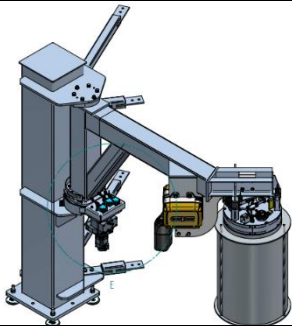

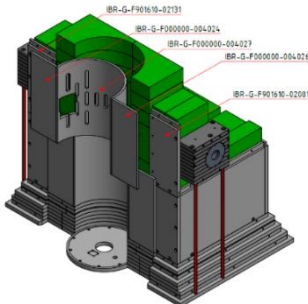
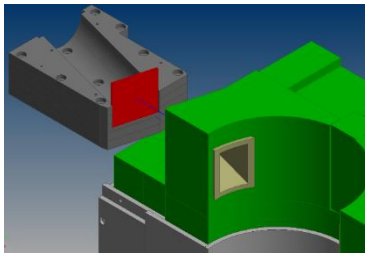
- Fasshubvorrichtung
- Fassdrehteller
- Fasszuführung
- PTFE Bauteile
- Hardware für Schaltschränke und Anlagenverdrahtung
 - Hardware für Schaltschränke und Anlagenverdrahtung
 - Hardware für Schaltschränke und Anlagenverdrahtung
 - für die Fördertechnik und Komponenten außerhalb des Containers
 - Hardware für QR-Code und Kamera
- Container
- Referenzfässer 200 Liter

Im Verantwortungsbereich
der Framatome GmbH

Die entsprechenden technischen Zeichnungen (insgesamt wurden ca. 860 technische Zeichnungen erstellt), CAD 3D Modell (siehe Abbildung 3), Risikobewertungsanalyse liegen vor. Im Bereich der Leittechnik wurde das komplette Systemschaltbild inklusive Schnittstellendefinition, Geometrieerkennung, Datenablage und Sicherheitsmaßnahmen von Framatome definiert und erfolgreich entwickelt. Die entsprechenden Stromlaufpläne wurden erstellt. Die im Projekt notwendigen Hardware Komponenten wurden seitens Framatome bestellt. Die Bestellung von manchen Komponenten (z. B. Neutronengenerator oder Grafit) war schwierig da die Unterlieferanten nicht die von Framatome angeforderten Qualifikationen und Qualität Anforderungen erbrachten (z.B. ISO 9001). In dem Fall wurden zusätzlichen Maßnahmen ergriffen um die angeforderte Qualität des Produktes zu erreichen. Insbesondere der Neutronengenerator, der nach Anlieferung verschiedene Problemen erwies. Reparaturen und Software Upgrades wurden in Rücksprache mit dem Ersteller durchgeführt. Es wurde eine Montageanleitung und eine originale Betriebsanleitung für die gesamte Anlage aufgeschrieben. Diese Originalbetriebsanleitung ist notwendig für die finale

Konformitätserklärung sowie für eine zukünftige Verwertung der Messanlage. Die folgenden Komponenten wurden entwickelt, bestellt (framatome), angefertigt und angeliefert:

1	DD-Neutronenquelle 4EXP9 n/s inkl. Transport; ADELPHI DD109.4	
2	Moderator- & Reflektormaterial Graphit	
3	Borierte Polythylenabschirmung	
4	Gammaabschirmung	
5	Neutronengeneratorhalterung (PTFE)	
6	2 Kollimatoren	

13	Container inkl. Infrastruktur	Nur Auslegung. Container wurde nicht angefertigt 
14	Schwenk-/Hubeinrichtung Messkammer beladen inkl. Fassgreifer	
15	E-Technik	
16	PTFE Bauteile	
17	Li-6-Carbonat	Wurde nicht in dem Projekt bestellt
18	Compound-Platte aus PTFE/Li-6- Carbonat zur Neutronenabschirmung für Detektor	

19	Haltezeuge für Moderator über Fass	 <p>BRK-G-F905533-000155 ZB-Ölarme Fassabsicherung 1 Haltezeuge</p>
20	Montagewerkzeuge (Hebezeuge, Transportrollen, Kettenzüge)	   
21	Messgeräte für Online-Neutronenflussmessung	  
22	Referenzproben 200-l-Fass und drei Matrices (Beton, Natriumchlorid, Calciumcarbonat, Siliciumdioxid)	
23	Neue Spaltkammer	
24	Winkelringadapterkäfig	

1.2. Sonderkonstruktion: Winkelringadapaterkäf (WAK)

Die Fässer ohne Winkelringdeckel (z.B. mit flachem Deckel) können nicht direkt vom Fassgreifer gegriffen werden. Für solche Fälle, wurde ein spezieller Winkelringadapter entwickelt, gefertigt und erfolgreich getestet. Jegliche 200-l-Fasstypen können nun gegriffen werden (siehe Abbildung 4).



Abbildung 4: Winkelringadapter für 200 l Fässer.

1.3. Sonderkonstruktion: Instrumentierungsfass

Im Rahmen der Software Validierung wurde ein Instrumentierungsfass entwickelt (siehe Abbildung 5). Das Fass besteht aus 48 Sektoren, die beliebig ausgefüllt werden können. Zusätzlich steht zentral ein Rohr, der auch beliebig ausgefüllt werden kann. Ziel dieser Konstruktion war die Heterogenität eines üblichen radioaktiven Fass nachzubilden.



Abbildung 5: Instrumentierungsfass bestehend aus 48 Sektoren.

Nach der erfolgreichen Inbetriebsetzung der Anlage und die Durchführung der ersten Messungen bzw. Auswertungen wurden einigen konstruktiven Änderungen an der Anlage durchgeführt.

1.4. Sonderkonstruktion: Antiverkippungssystem

Der „untere Stopfen“ (siehe Abbildung 6) ist mit einem Teleskop Zylinder durch eine Kugelverbindung verbunden. Dadurch konnte der Stopfen kippen. Nachdem der Stopfen gekippt ist, konnte er nicht mehr in seine waagerechte Ausgangsposition zurückkehren.



Abbildung 6: Anbringen einer Klemme (Anti-Verkippungssystem in blau auf den Bildern eingekreist) unter dem Zirkonium Teller.

Der Freiheitsgrad der Verkippung wurde durch eine Klemme unterdrückt (siehe Abbildung 6). Die Auswirkung der Klemme wurde händisch getestet: der Stopfen kehrt zurück in die Ausgangsposition nach dem der Druck losgelassen wurde. Zudem wurde für verschiedene Fässer die Schwankungen der Hubhöhe bei den Drehungen aufgenommen und dokumentiert.

1.5. Sonderkonstruktion: Zentrierteller

A Die Fässer werden mittels des Krans und Fassgreifers angehoben und in die Messkammer abgesetzt. Der Fassgreifer und somit das Fass hängt an einer Kette. Es entsteht beim Anheben und Kranen eine Pendelbewegung des Fasses, welche dazu führt, dass das Fass nicht automatisch zentriert auf den Drehteller abgesetzt wird. Das Fass müsste händisch zentriert werden, was jedoch keine langfristig tragfähige Lösung darstellt, weil sich das Betriebspersonal hier zu lange im Strahlenfeld und zu nah an den radioaktiven Abfallfässern (Strahlenquellen) aufhält. Dies wurde verhindert, indem das Fass automatisch mittels eines Zentriertellers zentriert wurde. Diese Lösung verhindert zudem das Rutschen der Fässer auf dem Drehteller. Der PTFE Deckel (unter den Fässern) wurde nachbearbeitet (siehe Abbildung 7). Es wurden Nuten mit verschiedenen Durchmessern in den Drehteller eingefräst. Das Testen dieser zwei mechanischen Änderungen wurde vor Ort erfolgreich durchgeführt und dokumentiert. Die Randbedingungen des Transports eines Sondercontainers (Gewicht und Abmessungen) innerhalb des Europäischen Wirtschaftsraumes (EWR) wurde untersucht. Aus diesen Erkenntnissen sind zusätzliche Anforderungen für die Auslegung des Sondercontainers entstanden.



Abbildung 7: Nachbearbeitete PTFE Platte mit Nuten (links), zentrierte Referenz Fass 7 (mitte), zentrierte Referenz Fass 5 (rechts).

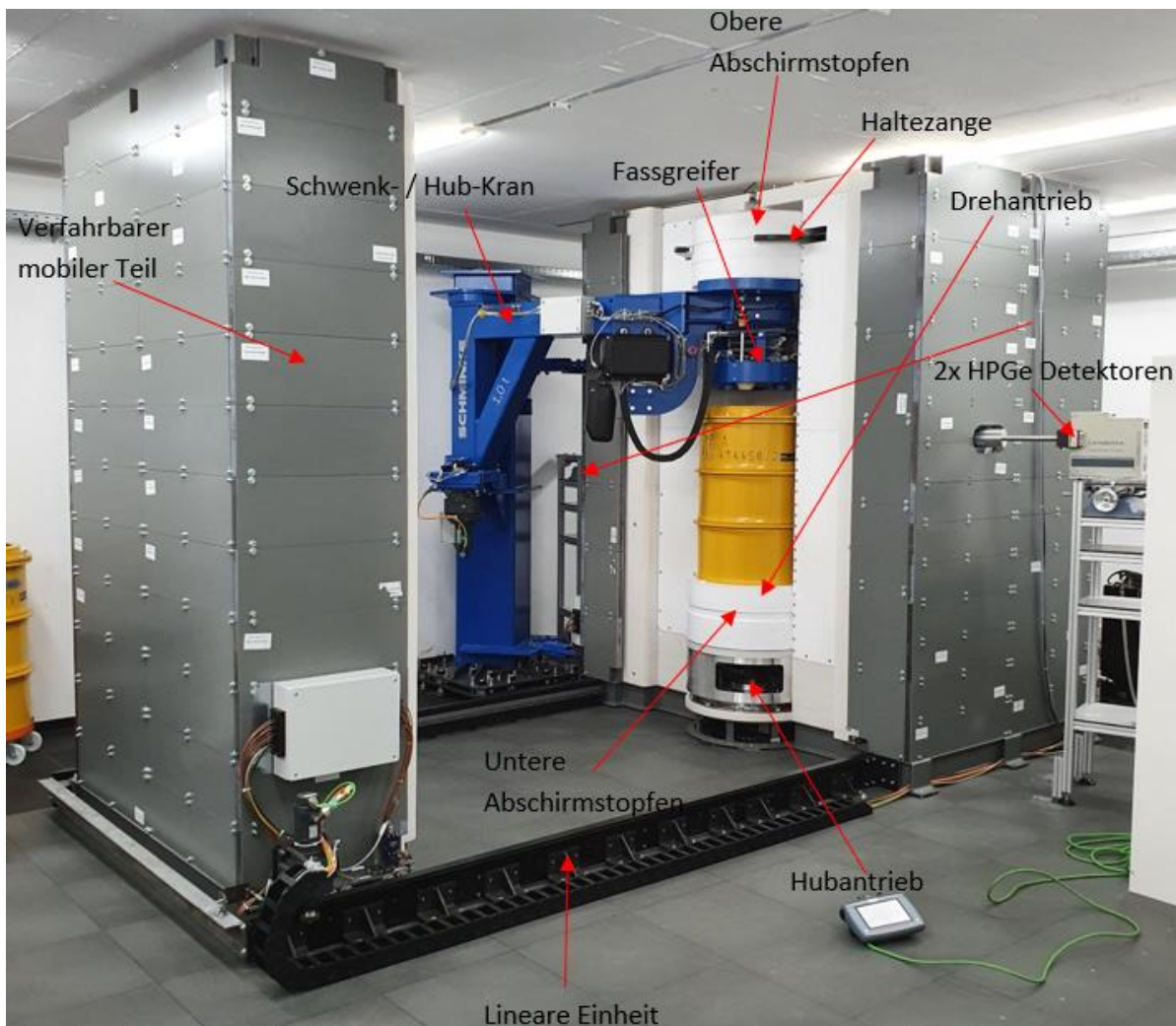


Abbildung 8: Übersicht der stationären Quantum-Messanlage.

1.6. Auslegung Sondercontainer

Der Standortwechsel für die Messanlage QUANTOM wurde nicht im Rahmen des Fördervorhabens stattgefunden. Zur Vorbereitung der Mobilität von QUANTOM erfolgte dennoch die konstruktive Auslegung des Sondercontainers. Die Auslegung eines solchen Sondercontainers müsste iterativ zwischen Framatome und der Unterlieferant durchgeführt werden. Die Fertigung und Bestellung des Sondercontainers erfolgten nicht im Rahmen des Vorhabens. Der Sondercontainer (siehe Abbildung 9 und Abbildung 10) bietet zusätzlich eine Barriere zu Raumbereichen mit erhöhter Gamma- und Neutronenstrahlung während des Betriebes der Messanlage. Der Container wurde so ausgelegt, dass das ODL Kriterium der Anzeigebedürftigkeit (StrlSchG § 17 Abs. 2) erreicht wird ($ODL < 10 \mu\text{Sv/h}$ im Abstand von 0,1 m von der berührbaren Oberfläche). Zudem wurde das Detailengineering des Sondercontainers durchgeführt (Öffnungen im Sondercontainer für das Einschwenken des Fasses mit dem Kran, Öffnungen für die HPGe Detektoren, Kabeldurchführungen siehe Abbildung 9). Zusätzlich muss die Messanlage im Sondercontainer beim Transport durch zusätzliche Fixierungen gesichert werden. Die Eigenschaften des Sondercontainers dürfen nicht die zulässigen Werte der StVO überschreiten (Gewicht, Breite, Höhe). Wenn dies der Fall wäre, müsste zusätzlich eine aufwendige Ausnahmegenehmigung beantragt werden. Dies wurde vermieden.



Abbildung 9: Übersicht der mobilen Messanlage QUANTOM.

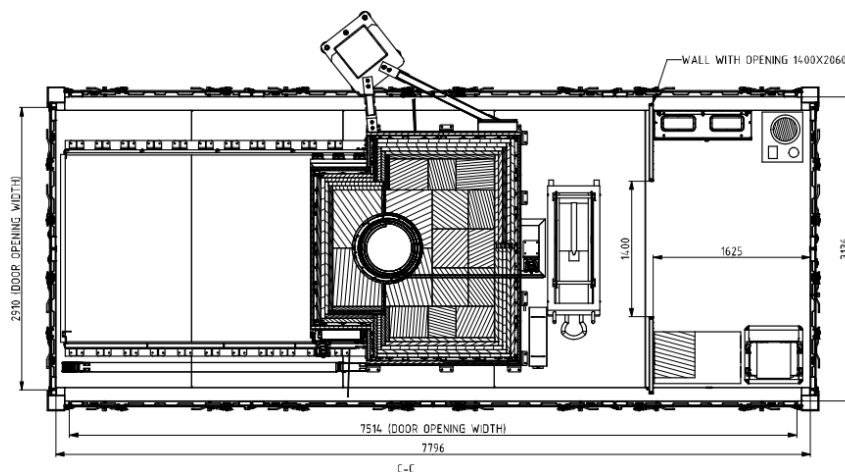


Abbildung 10: Blick von oben der mobilen Messanlage QUANTOM.

2. AP2: Strahlenschutzkonzept inklusive Abschirm- und Aktivierungsberechnungen

Die Berechnungen der zu erwartenden Ortsdosisleistungen wurden mittels der Simulationssoftware MCNP6 [39] durchgeführt [49]. Hierfür wurden Teile des Technikums von AiNT, das im Technikum liegende Strahlenschutzbauwerk sowie der abgeschirmte Neutronengenerator innerhalb der QUANTOM-Messanlage in MCNP6 detailliert abgebildet. In MCNP6 wurde eine Neutronenquelle mit einer Quellstärke von 4×10^9 Neutronen pro Sekunde und einer Neutronenenergie von 2,45 MeV (Deuterium-Deuterium Neutronengenerator) simuliert. Dies entspricht der maximalen Quellstärke des Neutronengenerators sowie der maximalen Energie der emittierten Neutronen. Der Quellpunkt befindet sich innerhalb des Neutronengeneratorgehäuses, der sich in der Moderationskammer aus Graphit, der Neutronen-Abschirmung aus boriertem Polyethylen sowie einer Gamma-Abschirmung aus Stahl-Blei-Verbundplatten befindet. Das MCNP-Modell der Messanlage, basierend auf dem aktuellen Anlagendesign und den hierfür angefertigten technischen Zeichnungen, ist in Abbildung 11 dargestellt.

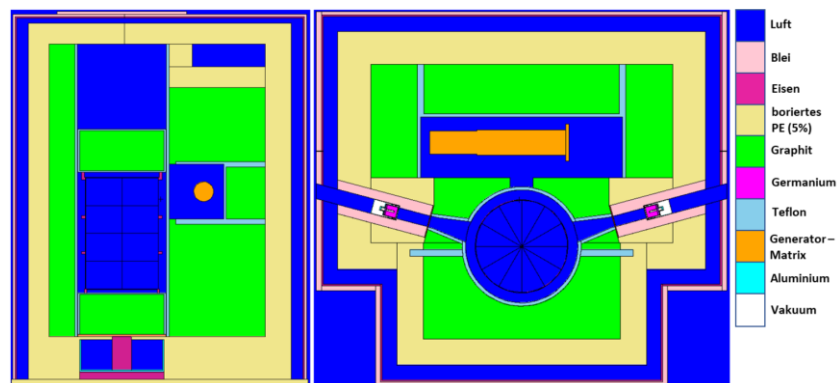


Abbildung 11: Schnittbilder der Messanlage in der Seitenansicht (links) und der Draufsicht (rechts). Der Neutronengenerator (orange) befindet sich innerhalb der Moderationskammer, bestehend aus Graphit (grün) und der Abschirmung aus boriertem Polyethylen (beige). Die Anlage wird allseitig von der mind. 16 cm starken Abschirmung aus boriertem Polyethylen (5 Ma-% Bor) umschlossen.

Des Weiteren wurden für die Simulation das Strahlenschutzbauwerk um die Messanlage sowie das Gebäude um das Strahlenschutzbauwerk modelliert. Hierfür wurden die Abmessungen aus dem Übersichtsplan zugrunde gelegt (siehe Abbildung 12). Mittels der MCNP6 Simulationsstudien wurden dreidimensionale Profile der Gamma- und Neutronen-Ortsdosisleistung erstellt. Bei den nachfolgenden Simulationsstudien ist die berechnete Neutronen-Ortsdosisleistung stets größer als die Gamma-Ortsdosisleistung. Die höchste Neutronen-Ortsdosisleistung wird festgestellt, wenn das Fass im Inneren kein Matrixmaterial enthält, welches Neutronen moderiert oder absorbiert. Für die Berechnung der Neutronen-Ortsdosisleistung ist es somit konservativer und insgesamt abdeckend, ein Fass als Messgut ohne Inhalt zu simulieren. Aus diesem Grund wurden die Simulationsstudien mit einem 200-l-Stahlfass nur mit Luft als Inhalt modelliert. Zur Bewertung der Ortsdosisleistung wurde die lokale Gamma-Ortsdosisleistung und die lokale Neutronen-Ortsdosisleistung addiert, um die Gesamt-Ortsdosisleistung zu erhalten. Zur Berechnung der Wechselwirkungen wurden die Wirkungsquerschnitte der ENDF/B-VIII.0 [18](Evaluated Nuclear Data File) Datenbank verwendet. Zur

Berechnung der Ortsdosisleistungen wurden die ICRP-74 (Internal Commission on Radiation Protection) Konversionsfaktoren zu Grunde gelegt.

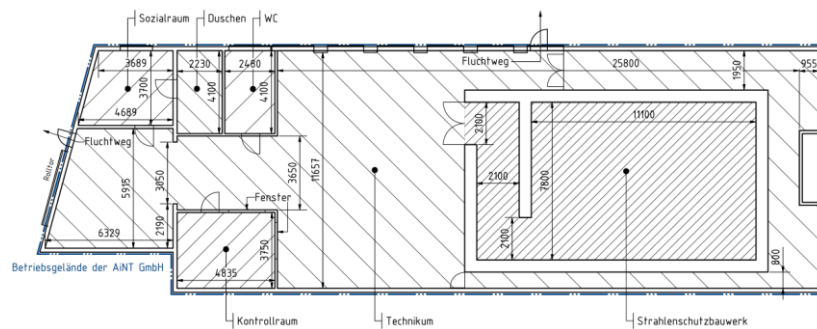


Abbildung 12: Grundriss des Technikums der AiNT GmbH mit Eintragung und Benennung aller Räume sowie Angabe der Abmessungen.

Die den Neutronengenerator umgebende Moderationskammer aus Graphit ($\rho = 1,81 \text{ g/cm}^3$) weist bereits abschirmende Eigenschaften auf und ist allseitig (mit Ausnahme der Messanlagenoberseite, hier 12 cm) von einer Abschirmung aus mindestens 16 cm starkem boriiertem Polyethylen umschlossen (5 Ma-% Bor, $\rho = 0,95 \text{ g/cm}^3$). Des Weiteren ist eine allseitige (ausgenommen Boden und Kabeldurchführung Rückwand) Gamma-Abschirmung bestehend aus 1 cm Stahl sowie 2 cm bzw. 3 cm Blei vorhanden. Die Gamma-Abschirmung wird in Form von Verbundplatten in einer Sandwichbauweise ausgeführt. Außen weisen die Verbundplatten eine Plattenstärke von 0,5 cm Stahl auf. Im Inneren befinden sich Bleiplatten mit 2 cm bis 3 cm Stärke. Im Modell wurden zwecks Vereinfachung stets die richtigen Materialstärken jedoch nicht die Reihenfolge aus Stahl, Blei und Stahl der Sandwichbauweise abgebildet. Diese Vereinfachung ist jedoch bzgl. der Simulationsergebnisse der Ortsdosisleistung vernachlässigbar. Bei den Simulationen wurde zudem eine Leckage (Luftspalt von 4 mm) mittig über der ganzen Höhe der seitlichen Gamma-Abschirmung simuliert, um eine konservative Abschätzung der austretenden Strahlung bei evtl. auftretenden Spalten zwischen den in Stoßanordnung montierten Platten zu treffen. Abbildung 13 und Abbildung 14 zeigen, dass an keiner der Außenflächen der Anlage eine ODL von 3 mSv/h überschritten wird. Während des Betriebs des Neutronengenerators bei maximaler Leistung liegt daher innerhalb des Kontrollbereichs kein Sperrbereich (ODL $\geq 3 \text{ mSv/h}$) vor.

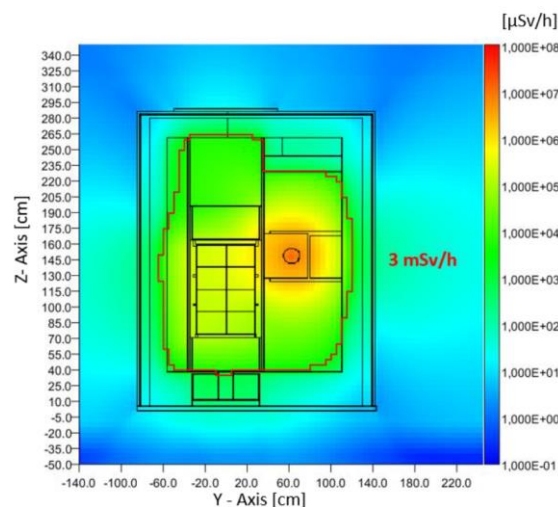


Abbildung 13: Schematische Seitenansicht der Messanlage QUANTOM auf Höhe des Quellpunktes. Die Isodosisleistungslinie für eine Ortsdosisleistung von 3 mSv/h (Grenzwert Sperrbereich) ist rot dargestellt. Während des Betriebs tritt kein zugänglicher Sperrbereich auf.

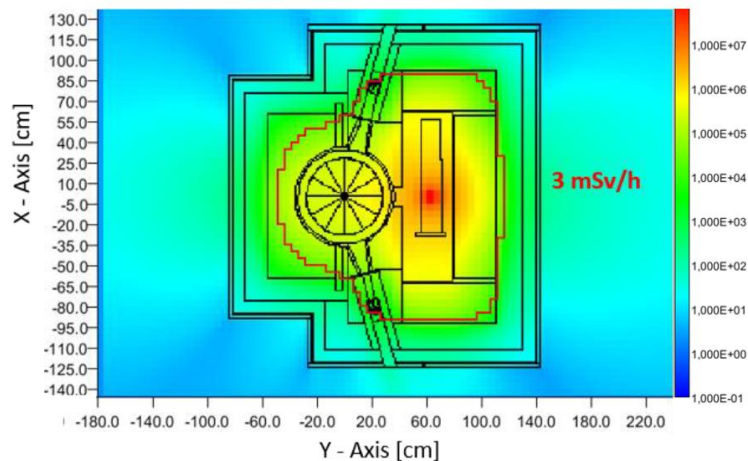


Abbildung 14: Schematische Draufsicht der Messanlage QUANTOM auf Höhe des Quellpunktes. Die Isodosisleistungslinie für eine Ortsdosisleistung von 3 mSv/h (Grenzwert Sperrbereich) ist rot dargestellt. Während des Betriebs tritt kein zugänglicher Sperrbereich auf.

Basierend auf der Berechnung für Ortsdosisleistung wurde ein Antrag auf Erteilung einer Genehmigung für den Betrieb der QUANTOM-Messanlage gestellt. Nach einer erfolgreich durchgeführten Sachverständigenprüfung wurde der Genehmigungsbescheid BS 2/2019 (AZ.: 55.853-BS 2/2019-Md) für QUANTOM im Jahr 2019 von Bezirksregierung Köln erteilt.

3. AP3: Nuklearphysikalische Simulation inklusive Validierung

Um die quantitative stoffliche Beschreibung für die zumessenden Abfallfässer anhand PGNAA-Methode durchzuführen ist es notwendig, den Neutronen- bzw. Gamma-Transport in der Messanlage simulativ zu bestimmen. Dafür hat AiNT eigenen Simulationscode entwickelt.

3.1. Simulationscode SPARC für Neutronentransportberechnung

Die Lösung der Neutronentransportgleichung wird für die Auswertung der Messergebnisse im Rahmen einer Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse (PGNAA) benötigt. Dazu wird ein Finite Elemente Code (hier SP₃-Löser genannt) entwickelt, der für jeden Teilbereich eines Fasses oder der Messanlage das zugehörige Neutronenspektrum auf Grundlage der bestimmten stofflichen Zusammensetzung des Fasses berechnet [58]. Um den Neutronenfluss in der QUANTOM-Messanlage zu bestimmen, wird eine Näherungslösung der Neutronentransportgleichung unter Verwendung der SP₃-Approximation numerisch berechnet. Die SP₃-Gleichungen sind unter der Annahme, dass Neutronen nur isotrop streuen, in der sogenannten Multigruppendarstellung gegeben durch ein System gekoppelter partieller Differentialgleichungen zweiter Ordnung.

Die Streuung von Neutronen an Atomkernen ist ein Zweikörper-Streuprozess. Hierbei hängt der Energieübertrag zwischen den beiden Körpern von der Kinematik des Streuprozesses ab. Der Betrag des Impulses des Neutrons wird durch seine kinetische Energie bestimmt, während der Betrag des Impulses des Atomkerns durch seine thermische Energie bestimmt ist. Für schnelle Neutronen kann

die thermische Eigenbewegung des Atomkerns gegenüber dem Impuls des Neutrons vernachlässigt werden, das heißt der Kern ist in Ruhe. Bei dieser Kinematik verlieren die Neutronen im Laborsystem bei jedem Streuprozess Energie, das heißt schnelle Neutronen können nur von höheren in niedrigere Energiegruppen streuen. Dieses Phänomen ist als Downscattering bekannt. Für schnelle Neutronen hat die Streumatrix Σ_s dadurch die Struktur einer unteren Dreiecksmatrix. Für thermische Neutronen hingegen kann die thermische Bewegung des Atomkerns nicht mehr vernachlässigt werden, da die kinetische Energie des Neutrons und die thermische Energie des Atomkerns von der gleichen Größenordnung sind. Durch die Bewegung der Atomkerne ändert sich die Kinematik des Streuprozesses. Dadurch können thermische Neutronen mit einer von der Energie des eingehenden Neutrons abhängigen Wahrscheinlichkeit beim Streuprozess Energie gewinnen. Sie können also auch von einer niedrigen in eine höhere Energiegruppe streuen. Dieser Effekt wird Upscattering genannt. Die resultierende Kopplungsstruktur ist wesentlich komplizierter, im Allgemeinen ist die Streumatrix unter Berücksichtigung von Upscattering im thermischen Bereich eine volle Matrix. Das sogenannte thermische Maximum des Neutronenflusses bei ca. 0,025 eV bildet sich aus, da für geringere Energien Upscattering und für höhere Energien Downscattering dominiert, während sich für diese Energie Upscattering und Downscattering ausgleichen. Dadurch sammeln sich in diesem Energiebereich relativ viele Neutronen an. Physikalisch gesehen streben die Neutronen ins thermische Gleichgewicht, welches an diesem Maximum vorliegt. Für die korrekte Beschreibung des Neutronenflusses bei mehreren thermischen Gruppen ist es notwendig, Upscattering zu berücksichtigen, um ein akkurates Ergebnis zu erhalten [28]. Dies ist von besonderer Bedeutung im Projekt QUANTOM, da die Neutronen im Fass im Wesentlichen thermalisiert sind.

Der einfachste Ansatz zur Berücksichtigung des Upscattering ist das simultane Lösen des Gleichungssystems für alle Energiegruppen. Hierbei bietet sich auf Grund der guten Performance und des im Vergleich zu direkten Lösern geringeren Speicherbedarfs ein Krylov-Unterraumverfahren mit geeigneter Präkonditionierung an. Problematisch an diesem Ansatz ist der sehr hohe Arbeitsspeicher-Bedarf. Diese Problematik wird im Folgenden anhand einer Rechnung für einen homogenen Graphitwürfel mit 1 m Kantenlänge verdeutlicht. Für 48.000 Finite Elemente mit 22 gekoppelten Energiegruppen ergibt sich ein Speicherbedarf von 9,24 GB. Dies verteilt sich auf 1,19 GB Overhead und 8,05 GB Speicher für die eigentliche Rechnung. Der Speicherbedarf wächst bei der Finiten-Elemente-Methode linear mit der Anzahl der Finiten-Elemente und quadratisch in der Anzahl der gekoppelten Differentialgleichungen und somit Energiegruppen, da hier alle Gleichungen miteinander voll gekoppelt sind. Für die vollständige Darstellung der QUANTOM-Messanlage wurde ein Bedarf von 100.000.000 Finite Elemente abgeschätzt. Diese Abschätzung basiert auf der Annahme, dass die durchschnittliche Größe eines Finiten Elements ca. 0,5 cm betragen wird. Diese Abschätzung ist sehr konservativ, die wirklich benötigte Anzahl Finiter Elemente wird im weiteren Verlauf des Projektes QUANTOM bestimmt. Außerdem wird angenommen, dass eine feinere Gruppenstruktur notwendig ist, wodurch 90 Energiegruppen bei Verwendung der SCALE238 Gruppenstruktur gekoppelt wären (entspricht der Anzahl der thermischen und damit gekoppelten Gruppen für die SCALE238-Gruppenstruktur). Die genaue Anzahl der benötigten Energiegruppen wird ebenfalls im weiteren Verlauf des Projektes untersucht. Der resultierende Arbeitsspeicher-Bedarf beträgt damit hochgerechnet 281 TB, was einer sehr konservativen Abschätzung nach oben entspricht. Dieser Speicherbedarf ist weitaus größer als der für QUANTOM vorrausichtlich zur Verfügung stehende Arbeitsspeicher (628 GB auf dem AiNT-Cluster), was die Verwendung dieser Methode ausschließt. Daher werden im Folgenden Verfahren angewandt, die diesen Bedarf erheblich reduzieren und gleichzeitig einen deutlichen Geschwindigkeitsvorteil liefern.

Die Inversionsmethode iteriert über die Materialzusammensetzung, und für jede Messposition in jeder Iteration ist eine vollständige Neutronentransportsimulation erforderlich, was mehrere Stunden Simulationszeit pro Iteration erfordert. Um sicherzustellen, dass die Simulationen in einem akzeptablen Zeitrahmen für eine industrielle Großanwendung durchgeführt werden können, wird im Rahmen des QUANTOM-Projekts ein speziell für diesen Zweck entwickelter deterministischer Neutronentransportcode auf Basis der SP_N -Approximation der linearen Boltzmann-Gleichung verwendet. Dieser Code wird SP_N Approximation for Remnant Characterization (**SPARC**) [41] genannt. Es löst die Multigruppen- SP_1 - oder SP_3 -Approximation der linearen Boltzmann-Gleichung unter Verwendung eines numerischen Finite-Elemente-Schemas. Für die Implementierung des entsprechenden Solvers wird es auf das Softwarepaket FEniCS zurückgegriffen. Die verwendete Finite Elemente-Diskretisierung wird im Laufe der Softwareentwicklung mit steigender Komplexität immer näher an die tatsächliche Anlagengeometrie angenähert. Zwecks Verifizierung dieser Annäherung wird in jeder Stufe der Steigerung der Anlagenkomplexität der Neutronenfluss gegen Simulationen mit MCNP verglichen. Das vollständige Anlagemodell unter SPARC durch das Finite-Elemente-Gitter wird in Abbildung 15 dargestellt, wobei das Fassvolumen in 48 Sektoren unterverteilt wird. Der durch SPARC simulierte Neutronenfluss im Fass wird mit dem Ergebnis aus MCNP verglichen (siehe Abbildung 15). Auf dem Vergleich zwischen MCNP und SPARC ist zu erkennen, dass die Abweichung im thermischen Energiebereich ($E < 0,1$ eV) weniger als 10 % beträgt. Im epithermischen Energiebereich bis 1 MeV ist die relative Abweichung konstant. Erst in den höheren Energiegruppen beträgt die Abweichung mehr als 50 %. Hier zu beachten ist, dass bei der Neutronenaktivierung nur die thermischen Neutronen die entscheidende Rolle spielen.

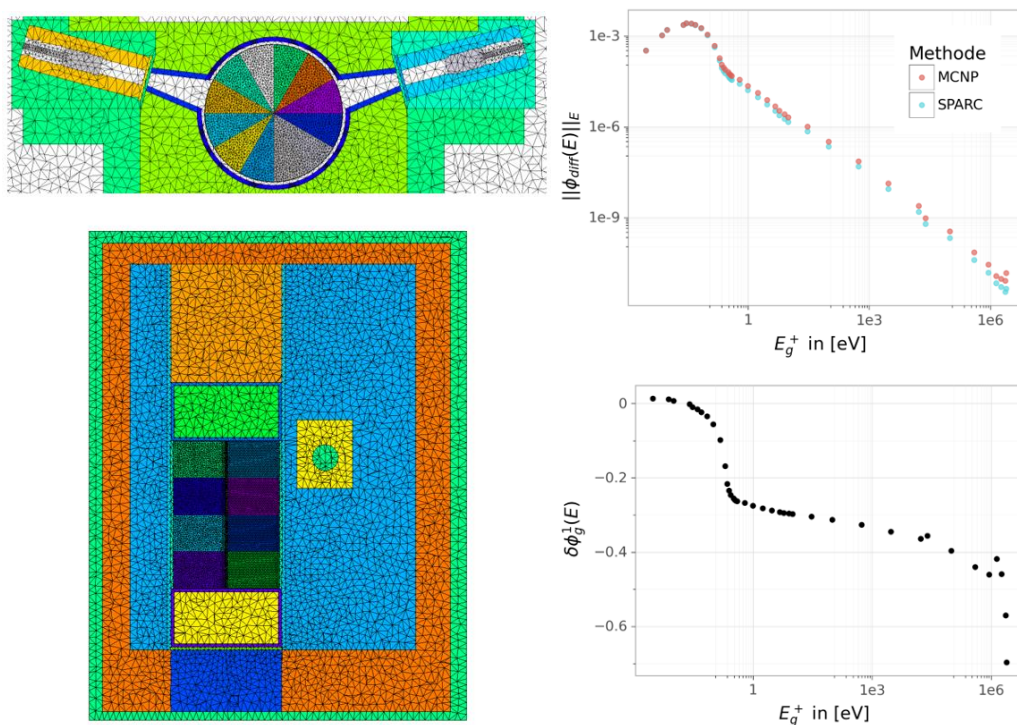


Abbildung 15: Links: Quer- und Längsschnitt des QUANTOM-Anlagemodells durch das Finite-Elemente-Gitter; Rechts: Vergleich Simulationsergebnis zwischen MCNP und SPARC. Oben: Neutronenenergieverteilung für das Fass in L^1 -Normierung; Unten: relative Abweichung der Neutronenenergieverteilung zwischen MCNP und SPARC in L^1 -Normierung.

4. AP4: Genehmigungsverfahren für den Betrieb der Messanlage

Basierend auf der Berechnung für Ortsdosisleistung (siehe Abbildung 13) wurde ein Antrag auf Erteilung einer Genehmigung für den Betrieb einer Anlage zur Erzeugung ionisierender Strahlung gemäß § 12 Abs. 1 Nr. 1 des Gesetzes zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlen (StrlSchG) der QUANTOM-Messanlage im Strahlenschutzbauwerk der AiNT GmbH gestellt.

Die folgenden Dokumente wurden erstellt und eingereicht:

- Sicherheitsbericht für den Betrieb der Messanlage Quantum
- Ergänzende Pläne, Zeichnungen, Beschreibungen
- Strahlenschutzorganisation
- Strahlenschutzverantwortlicher und –beauftragte
- Strahlenschutzanweisung für den Betrieb der Messanlage Quantum
- Atomrechtliche Deckungsvorsorge

Nach einer erfolgreich durchgeführten Sachverständigenprüfung wurde der Genehmigungsbescheid BS 2/2019 (AZ.: 55.853-BS 2/2019-Md) für QUANTOM im Jahr 2019 von Bezirksregierung Köln erteilt. Im Laufe des Projektes wurde diese Genehmigung erweitert. Ein Antrag auf Erteilung einer Genehmigung für den Umgang mit sonstigen radioaktiven Stoffen gemäß § 12 Abs. 1 Nr. 3 des Gesetzes zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlen (StrlSchG) wurde erstellt. Die eingereichten Antragsunterlagen sind wie folgt strukturiert:

- Antragsunterlage 1: Bericht zur Erfüllung der Genehmigungsvoraussetzungen
- Antragsunterlage 2: Ergänzende Pläne, Zeichnungen, Beschreibungen
- Antragsunterlage 3: Strahlenschutzorganisation
- Antragsunterlage 4: Strahlenschutzverantwortlicher, -beauftragte(r)
- Antragsunterlage 5: Strahlenschutzanweisung
- Antragsunterlage 6: Freigabeanweisung
- Antragsunterlage 7: Nachweis der Deckungsvorsorge

Diese vorliegende Antragsunterlage beschreibt die Erfüllung der Genehmigungsvoraussetzungen, indem die Rahmenbedingungen des avisierten Umgangs sowie die hierdurch auftretenden potenziellen Gefährdungen sowie deren Prävention dargelegt werden. Die nachfolgenden Unterlagen sind Anlagen zu dieser Antragsunterlage, dem Bericht zur Erfüllung der Genehmigungsvoraussetzungen, und befinden sich in Antragsunterlage 2:

- Umschlossene radioaktive Stoffe der AiNT GmbH
- Geotechnischer Bericht über Baugrund und Gründung
- Ergänzungen zum Brandschutzkonzept
- Brandschutzplan
- Feuerwehrplan
- Allgemeine bauaufsichtliche Zulassung der Gebäudetüren
- Wertschutzschrank
- Schutzbeschläge, Zylinderschlösser, Vorhängeschloss, Überfalle
- Einbruchmeldeanlage
- Transportmeldung

Die Erweiterung der Genehmigung zum Umgang mit radioaktiven Stoffen (Prüf- und Kalibrierstrahler, Umgang mit radioaktiven Fässern) wurde von der Bezirksregierung Köln im Jahr 2020 erteilt. Die Gesamtaktivität Radioaktive Stoffe in offener Form (im Regelfall befinden sich die Stoffe in verschlossenen 200 Liter-Stahlfässern) beträgt **3 x 10⁹-fache der Freigrenze**.

5. AP5: Softwareentwicklung für Betrieb und Messdatenauswertung

Die Architektur der Steuerungs- und Auswertesoftware der Messanlage QUANTOM von einer Top-Level Perspektive wurde ausgearbeitet (siehe Abbildung 16). Dabei werden insbesondere die einzelnen Komponenten, ihr Zusammenspiel und die Schnittstellen dazwischen beschrieben. Weiterhin werden Verantwortlichkeiten zwischen den Projektpartnern Framatome, AiNT und FINT zugeordnet. Folgend wird die Softwarearchitektur [50] dargestellt und die einzelnen Komponenten beschrieben. Die Schnittstellen dazwischen sowie die Input- und Outputdaten werden dokumentiert [51].

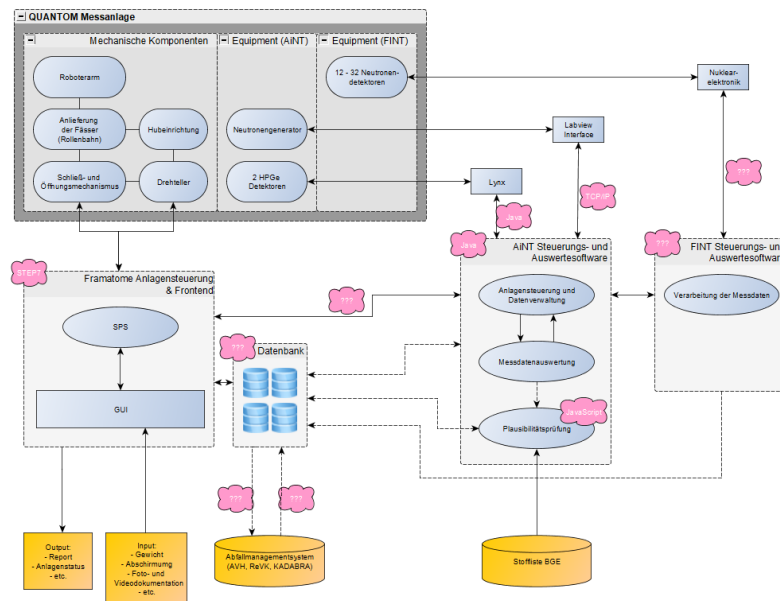


Abbildung 16: Darstellung der Top-Level Softwarearchitektur für QUANTOM.

5.1. Framatome Anlagensteuerung

Die Messanlage QUANTOM besteht aus mechanischen Komponenten, die die Beladung der Messanlage inklusive des Öffnungs- und Schließmechanismus übernehmen. Dieser Teil der Messanlage wird über eine SPS (speicherprogrammierbare Steuerung) angesteuert. Die Verantwortung liegt hierbei beim Projektpartner Framatome. Die Steuerung und Kontrolle der mechanischen Komponenten werden durch eine Lösung der SIEMENS AG implementiert. Die softwaretechnische Umsetzung geschieht mittels der Programmierumgebung STEP7. Dadurch wird ebenfalls eine GUI (Graphical User Interface) realisiert, die folgenden Funktionalitäten erbringen muss:

- **Graphische Darstellung des Anlagenstatus** für den/die Messtechniker/-in, der/die die Messanlage bedient und steuert sowie Funktionalitäten für die Steuerung des Messablaufes.
- **Interface für die Eingabe/Übergabe der Inputdaten** die für den Betrieb der Messanlage sowie für die Messdatenauswertung notwendig ist (wie z.B. Gewicht, Geometrie, Abschirmungen).
- **Ausgabe des (noch zu definierenden) Messprotokolls** sowie ggf. der Messergebnisse, ggf. auch mit direkter Visualisierung, als eigenständiger Report, in einem zu definierenden

Dateiformat und/oder über eine Schnittstelle in eine Datenbank oder direkt in ein bestehendes Abfallmanagementsystem (AVK, ReVK).

Diese Softwarelösung läuft auf einem Desktop Computer. Die Framatome Anlagensteuerung steuert und kontrolliert den gesamten Messablauf und kontrolliert damit insbesondere alle sicherheitsrelevanten Anlagenzustände (aktiver Messbetrieb). Diese können auch durch geeignete Hardware-Interlocks realisiert werden. Die Steuerung für den Betrieb der Messanlage wurde in einem Schaltschrank untergebracht. Diese befinden sich im Strahlenschutzbauwerk: Als zentrale Steuerung wird eine SPS Simatic S7-1500 von der Firma Siemens verwendet. Für die Bedienung und Visualisierung der Messanlage ist ein PC mit zwei Monitoren, Maus und Tastatur vorhanden. Die Bedienoberfläche (GUI) wurde mit der Software „WinCC flexible“ (Version 7.5 + Update 4) von der Firma Siemens erstellt (siehe Abbildung 17). Die Bedienoberfläche des Handpanels wurde, mit dem im TIA-Portal v15 integrierten HMI-Software erstellt. Die Betriebsanleitung der Steuerung wurde dokumentiert [19]. Die Steuerung des Neutronengenerators erfolgt fernbedient gemäß der Bedienungsanleitung „Operation and Maintenance Manual“ [20]. Die Montage, Bedienung, Wartung und Instandhaltung der HPGe Detektoren befinden sich in [21]. Die Betriebsanleitung und Instandhaltung der Spaltkammer ist in [22] beschrieben. Am unteren Bildrand sind die in dem jeweiligen Bild möglichen Untermenüs, oder Anlagenbilder dargestellt.



Abbildung 17: Darstellung des „Hauptmenü“ in der Quantum GUI.

5.1.1. Anforderungen an die Sicherheitseinrichtungen

Laut Gefährdungsanalyse entsprechend EN ISO 13489 (siehe Abbildung 18) ist für die Quantum Anlage Performance Level d eingehalten worden. Die in der Steuerung verwendeten sicherheitsrelevanten Bauteile erreichen folgende Kategorien:

- SPS Safety Baugruppen PL e
- Motormodule PL e
- Frequenzumrichter S110: PL d

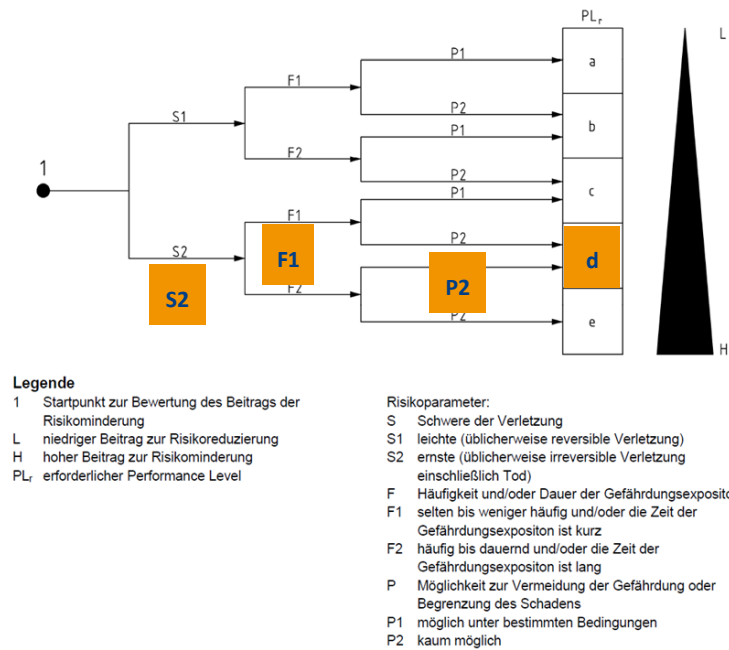


Abbildung 18: Gefährdungsanalyse mit Bestimmung des Performance Levels.

5.1.2. Allgemeine Bemerkungen

Die Bedienung der Anlage im Automatikbetrieb erfolgt nur über die Maus und Tastatur am Bedienplatz. Die Bedienung beim Einbringen bzw. Tauschen der Messobjekte, speziell die Bedienung der Abschirmung und des Krans, erfolgt am Handpanel. Der Anlagenstatus (siehe Tabelle 2) wird in den Übersichtsbildern (siehe Abbildung 19) dargestellt. Hierin sind die Einzelkomponenten der Anlage schematisch dargestellt. Je nach Betriebsart und Zustand der Komponenten sind die Symbole in verschiedenen Farben dargestellt. Die Farben der einzelnen Symbole haben folgende Bedeutung:

Farbe	Status	Beschreibung
		Hintergrundfarbe, keine Bedeutung
	inaktiv	Die Komponente ist aus, nicht aktiv, keine Störung
	aktiv	Die Komponente ist eingeschaltet bzw. Sensor aktiviert
	Warnung	Eine Warngrenze wurde überschritten
	Störung	Es liegt eine Störung vor, die Komponente wurde abgeschaltet.
	Simuliert aus	Die Komponente ist im Simulationsbetrieb, Status aus
	Simuliert ein	Die Komponente ist im Simulationsbetrieb, Status ein

Tabelle 2: Anlagenstatus der gesamten Anlage.

5.1.3. Anlagenbilder

Um den Gesamtstatus der Messanlage und der Einzelkomponenten anzuzeigen, sind folgende Anlagenbilder vorhanden. Bei allen Anlagenbildern befindet sich im oberen Teil des Bildschirms die Statuszeile. Hier werden neben Datum und Uhrzeit die gewählte Betriebsart und evtl. anstehende Stör- oder Warnmeldungen angezeigt.

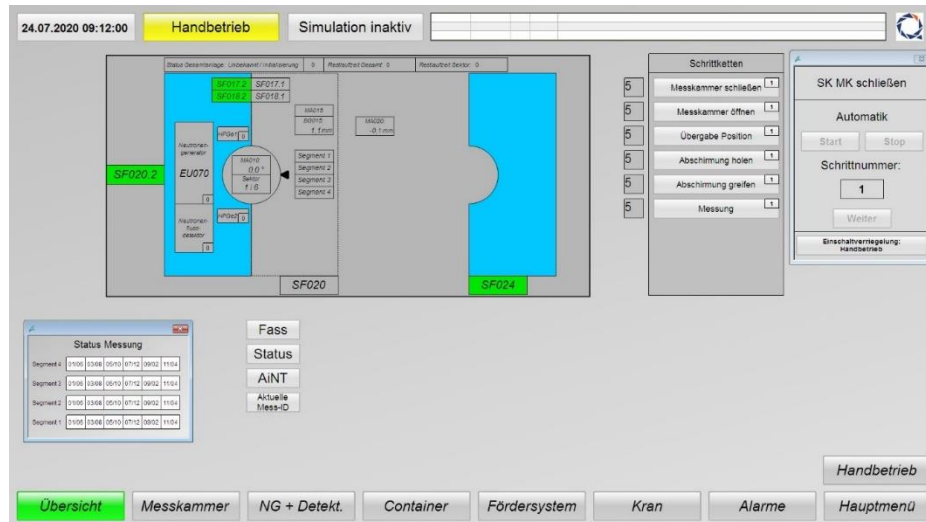


Abbildung 19: Übersicht Darstellung der Messanlage in der Quantum GUI.

a. Messkammer

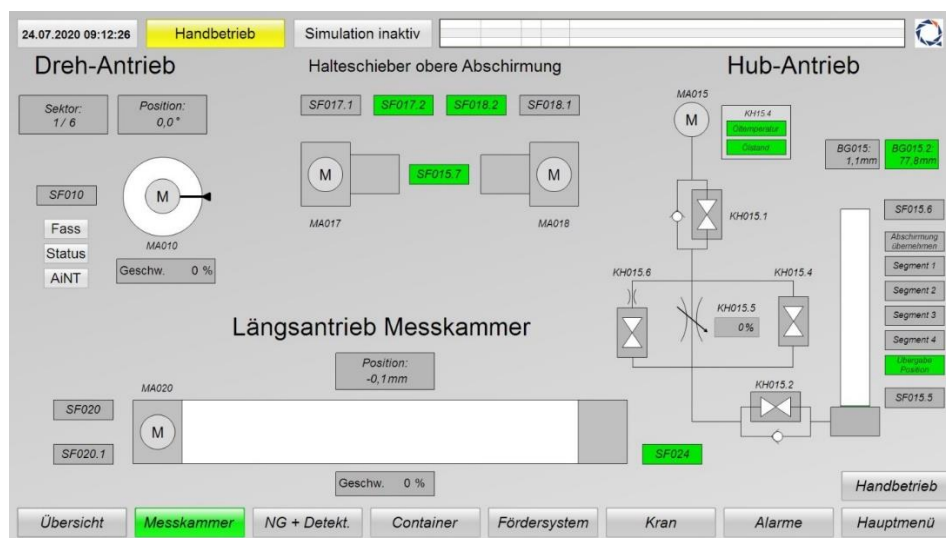


Abbildung 20: Messkammer Darstellung in der Quantum GUI.

Im Übersichtsbild (siehe Abbildung 19) werden die wichtigsten Informationen der Gesamtanlage und der Status der wichtigsten Sensoren und Positionswerte angezeigt. Hier werden alle Komponenten innerhalb der Messkammer im Detail dargestellt. Obiges Bild zeigt im Einzelnen folgende Informationen:

- **Drehantrieb:**
Istposition Drehantrieb (0 – 360°)
Sektor Drehantrieb (1 – 6)

Referenzsensor Drehantrieb (SF010)

Aktuelle Geschwindigkeit Drehantrieb (-100 – 100%)

- **Halteschieber:**

Antrieb Halteschieber links (MA017 ein oder aus)

Antrieb Halteschieber rechts (MA018 ein oder aus)

Position Halteschieber links (eingefahren – SF017.1 oder ausgefahren – SF017.2)

Position Halteschieber rechts (eingefahren – SF018.1 oder ausgefahren – SF018.2)

Status Lichtschranke oberer Abschirmstopfen vorhanden (SF015.7)

- **Hubantrieb:**

Status Hydraulikpumpe (MA015 ein oder aus)

Status Hydraulikpumpe (SF015.4 Öltemperatur, Ölstand)

Status der Hydraulikventile (KH015.1, 2, 4, 5, 6)

Servoventil KH015.5 (Sollwert 0-100%)

Höhenposition Hubantrieb (BG015: Seilzug-Weggeber - mm)

Abstands-Sensor oberer Stopfen (BG015.2 - mm)

Status Lichtschranke Fass oben (SF015.6)

Status Höhenposition (Abschirmung übernehmen, Segment 1 – 4, (siehe 5.1.4)

Übergabe Position)

Status Lichtschranke Fass unten (SF015.5)

- **Längsantrieb Messkammer:**

Istposition Längsantrieb (mm)

Status Antrieb (MA020 ein oder aus)

Endschalter Messkammer geschlossen (SF020.1)

Sicherheits-Endschalter Messkammer geschlossen (SF020)

Endschalter Messkammer offen (SF024)

Aktuelle Geschwindigkeit Längsantrieb (-100 – 100%)

b. Neutronengenerator und HPGe Detektoren

Hier sind im Wesentlichen die Inhalte der Daten der UDP Schnittstelle zwischen der Framatome Anlagensteuerung und der AiNT Steuerung dargestellt. In der unteren rechten Ecke ist der Status der Lüftung (Lüftung NG) und Kühlung (Kühlung NG) des Neutronengenerators und der Kühlung der Mikrowelle (Kühlung MW) zu sehen (grün aktiv, grau inaktiv).

- In den Eingabefeldern „Befehlscode“ und „Code Variable 2“ können die einzelnen Befehle an die UDP Schnittstelle manuell gesendet werden (Übergabe nach „Befehl senden“).
- Im oberen Teil des Bildes werden die Status der Einzelkomponenten angezeigt.
- Im unteren Teil sind die Antworten des letzten Befehlscodes dargestellt.
- Die Schnittstellen-Simulations-Buttons werden für den Normalbetrieb der Anlage nicht benötigt und sollten nur in Rücksprache mit der Framatome GmbH genutzt werden.

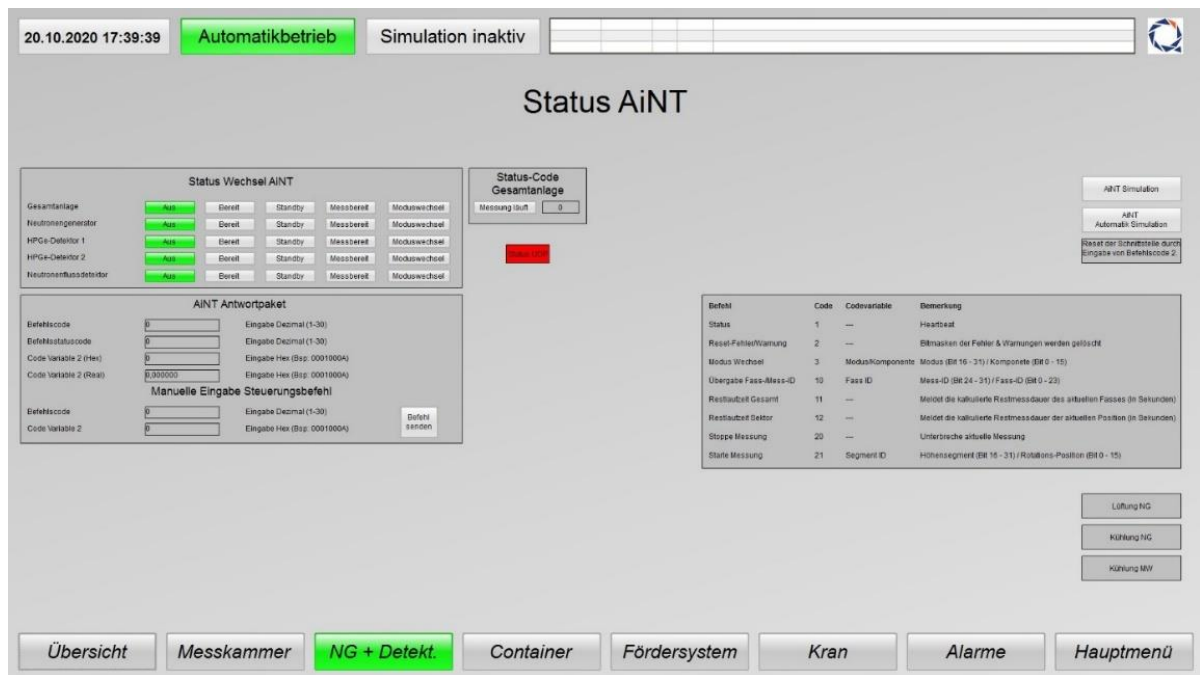


Abbildung 21: Neutronengenerator und HPGe Detektoren Darstellung in der Quantum GUI.

c. Container / Fördersystem

Diese Bilder dienen später der Visualisierung der Container Status und der Steuerung und Visualisierung des Fördersystems. Es sind lediglich Platzhalter ohne besondere Funktionen. Der Schwenk- Hub- Kran dient zum Bestücken der Messanlage mit 200 l Fässern. Obiges Bild zeigt im Einzelnen folgende Informationen:

- Schwenkantrieb:**
 - Istposition Schwenkantrieb (0 – 110°)
 - Geschwindigkeit Schwenkantrieb (1 – 100%)
 - Reduzierte Geschwindigkeit bei Fahrstart (DR-2S3)
 - Festpositionen Schwenkantrieb (Pos. 1 – Messkammer (unter dem oberen Stopfen, siehe Abbildung 34), Pos. 2 – Aufnahme- und Absetzposition der zu messenden Fässer, außerhalb der Messanlage,
 - Pos. 3 Übernahmeposition, wird erst in Verbindung mit der Fördertechnik benötigt)
 - Endschalter Schwenkantrieb Messkammer (DR2S1)
 - Endschalter Schwenkantrieb Förderstrecke (DR2S6)
- Hubwerk:**
 - Antrieb Hubwerk (MA055 ein oder aus)
 - Position Hubwerk Greifer oben (3 Sensoren GR1-B2/4/6)
 - Position Hubwerk Greifer (auf Fass) aufgesetzt (3 Sensoren GR3-B2/4/6)
- Greiferantrieb:**
 - Greiferantrieb (GR-5M2 ein oder aus)
 - Endschalter Greifer geöffnet (GR-4S1)
 - Endschalter Greifer geschlossen über Federpaket (GR-4S6)
 - Endschalter Greifer gegriffen (GR-4S3)

d. Schwenk- / Hub-Kran

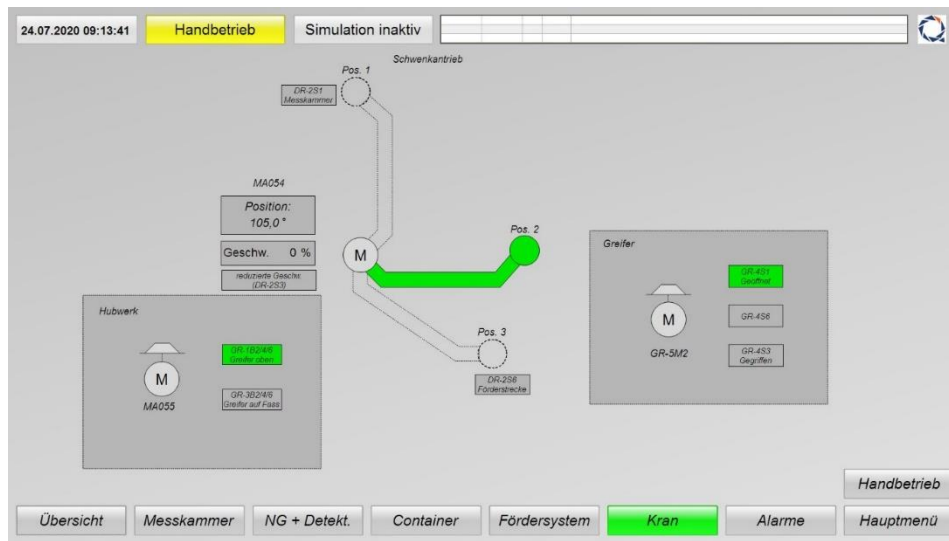


Abbildung 22: Schwenk- / Hub-Kran Darstellung in der Quantum GUI.

5.1.4. Beschreibung der Sektornummerierung

Für die Bedienung der Anlage ist das Verständnis für die Zusammensetzung der Sektor-Nummerierung und die Bedeutung der Höhensegmentnummer notwendig. Das Fass wird dabei in 4 Höhensegmente unterteilt. Die Nummerierung ist aufsteigend, beginnend vom Boden des Fasses (siehe Abbildung 23). Da die HPGe-Detektoren eine feste Höhe haben und das Fass vorbei bewegt wird, ist das Fass bei der Messung von Segment 1 am höchsten Hubpunkt. Jedes Höhensegment ist in 12 Sektoren unterteilt. Es werden immer zwei Sektoren gleichzeitig gemessen, da zwei HPGe-Detektoren vorhanden sind. Die erste Ziffer der Sektornummer gibt das Segment an. Die Rotation während der Messung ist gegen den Uhrzeigersinn und bei jeder Drehung 60° . Sektoren werden in der folgenden Reihenfolge gemessen: 101/106, 103/108, 105/110, 107/112, 109/102.

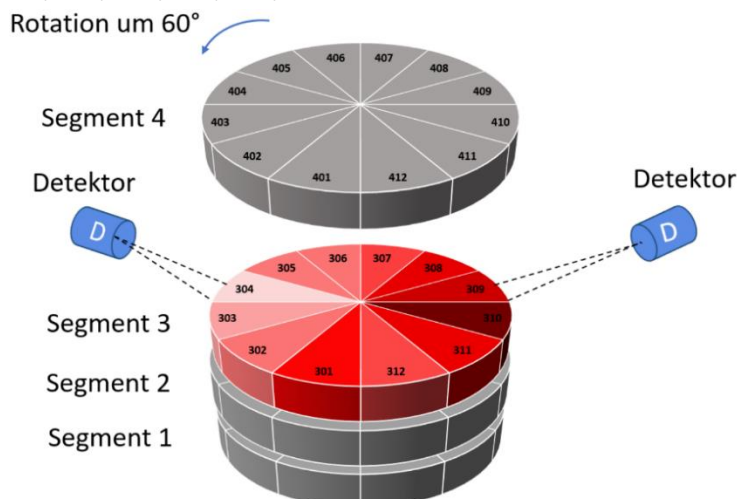


Abbildung 23: Darstellung der Sektornummerierung und Detektorpositionen.

5.1.5. Betriebsarten

Es ist möglich die Anlage in 3 verschiedenen Modi zu betreiben: Automatikbetrieb, Handbetrieb, Simulationsbetrieb.

- Automatikbetrieb

Der Automatikbetrieb kann nur über die Bedienoberfläche des Anlagenrechners am Bedienplatz gesteuert werden. Um einen Automatikablauf zu starten, muss sich ein Fass in der Messanlage befinden. Weiterhin muss sich der obere Abschirmstopfen in den geschlossenen Haltezangen befinden. Nach Aktivierung des Automatikbetriebes im Menüpunkt „Betriebsarten“ erhält man im Übersichtsbild folgende Anzeige:

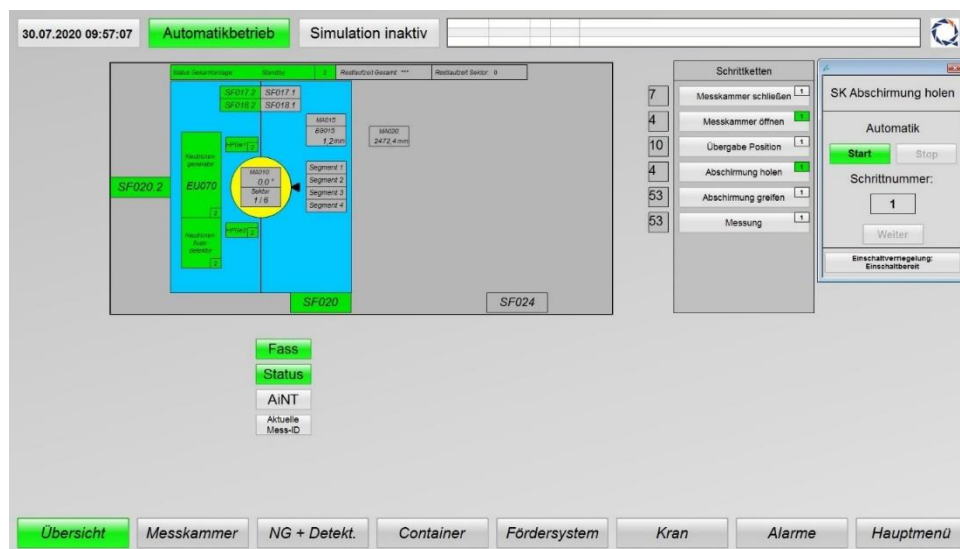


Abbildung 24: Übersicht der „Automatikantrieb“ Darstellung in der Quantum GUI.

Im Folgenden sind die möglichen Automatikabläufe und die zugehörigen Verriegelungen, die zum Start dieser Abläufe wirksam sind, programmiert worden und nachfolgend aufgelistet:

- Messkammer schließen:
 - Funktion: Die Messkammer wird komplett geschlossen.
 - Verriegelung: Der Schwenkantrieb des Kranes muss mindestens bis Position 2-Absetzposition oder weiter ausgeschwenkt sein.
- Messkammer öffnen:
 - Funktion: Die Messkammer wird komplett geöffnet
 - Verriegelung:
 - Der obere Abschirmstopfen darf sich nicht auf dem Fass befinden.
 - Der Hubantrieb muss sich in Übergabeposition befinden.
 - Die Anlage darf nicht im Messbetrieb sein (Status Messung läuft).
- Übergabe Position:
 - Funktion: Die Hubeinheit fährt komplett nach unten bis zur Übergabeposition, der Drehtisch fährt in Nullposition (Anzeige 0°).
 - Verriegelung: Der Hydraulik-Ölstand und die Öltemperatur müssen OK sein (Status der

Anzeigen SF015.4 im Bild Messkammer müssen grün sein). Wenn der Hydraulik-Ölstand zu niedrig oder die Öltemperatur zu hoch sind, wird eine entsprechende Störmeldung ausgegeben und die Anzeige SF015.4 in der Quantum GUI wird rot.

- Abschirmung holen:
 - Funktion: Die Hubeinheit fährt nach oben, hebt den Abschirmstopfen mit dem Fass um mindestens 3 mm an und öffnet die Haltezangen. Danach wird von der Hubeinheit die erste Messposition (Segment 1 – oben) angefahren. Anschließend kann der Messablauf gestartet werden.
 - Verriegelung:
 - Der Hydraulik Ölstand und die Öltemperatur müssen OK sein.
 - Der Lichttaster Abschirmstopfen vorhanden (SF015.7) muss angesprochen haben.
 - Ein Fass muss auf der Dreheinheit vorhanden sein.
- Abschirmung greifen:
 - Funktion: Die Hubeinheit fährt nach oben bis zur Greifposition und schließt die Haltezangen. Danach wird die Übergabeposition (unten) angefahren.
 - Verriegelung:
 - Der Hydraulik Ölstand und die Öltemperatur müssen OK sein
(Status der Anzeigen SF015.4 im Bild Messkammer müssen grün sein). Wenn der Hydraulik-Ölstand zu niedrig oder die Öltemperatur zu hoch sind, wird eine entsprechende Störmeldung ausgegeben und die Anzeige SF015.4 in der Quantum GUI wird rot.
 - Der Abschirmstopfen muss sich auf dem Fass befinden.
- Messung:
 - Funktion: Ablauf einer kompletten Messreihe in allen Segmenten und Sektoren.

Beim Start der Schrittkette „Messung“ wird der Messablauf ab der aktuellen Position der Hubeinheit (Segment 1) und der Dreheinheit (Sektor 01) gestartet. Bei Betätigung der „Stop“ Taste wird der Ablauf nach der aktuellen Messung unterbrochen. Mit „Weiter“ kann der Automatikablauf in der nächsten Position fortgesetzt oder mit „Stop“ beendet werden. Jetzt besteht die Möglichkeit im Handbetrieb ein anderes Segment oder einen Sektor anzufahren und hier die Messung weiterzuführen oder eine einzelne Position erneut zu messen. Der Status der Messungen der einzelnen Segmente / Sektoren kann im Infofeld „Status“ in der GUI angezeigt werden (siehe Abbildung 24). Dabei sind die Farben der Positionen wie folgt zu interpretieren:

- Weiß – Keine Messung gestartet
 - Gelb – Messung wurde gestartet/läuft
 - Grün – Speichern nach Messung abgeschlossen
 - Rot – Messung abgebrochen
- Handbetrieb

Der Handbetrieb am Bediener PC ist passwortgeschützt. Im Handbetrieb können mit dem Handbedienpanel alle Komponenten manuell gefahren werden. Eine nähere Beschreibung des Handbetriebes ist in [23] zu finden. Im Hauptmenü kann man jeder Komponenten der Messanlage auswählen und steuern (Drehantrieb, Hubantrieb, Längsantrieb, etc. siehe Abbildung 25).

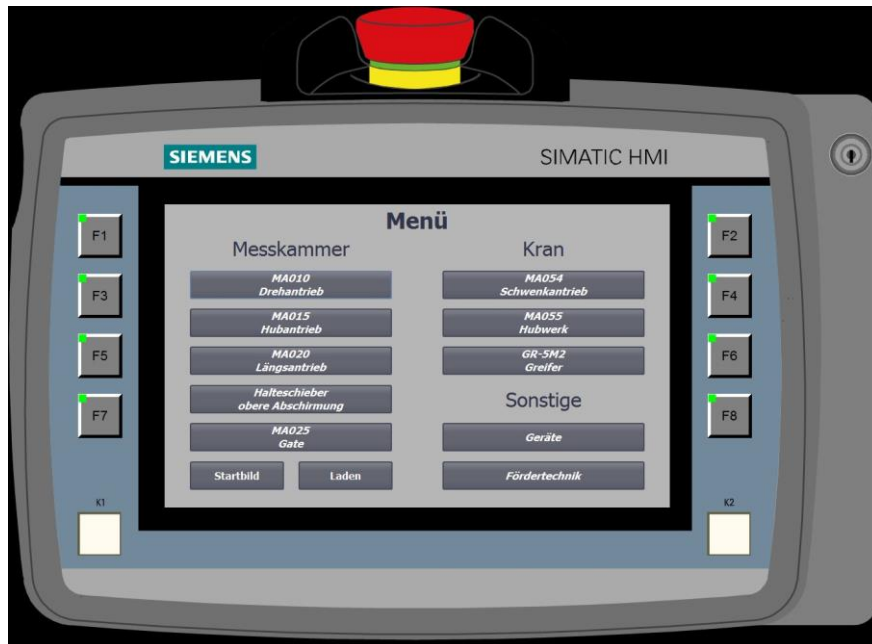


Abbildung 25: Handpanel Menü.

- Simulationsbetrieb

Der Simulationsbetrieb ist passwortgeschützt und wird nur für bestimmte Service- und Einstellzwecke benötigt. In dieser Betriebsart kann für einzelne Sensoren der Status (Ein oder Aus) bzw. der Messwert durch Eingabe über die Bedienoberfläche simuliert werden. **Achtung:** Durch den Simulationsbetrieb können Verriegelungen überbrückt und die Anlage dadurch beschädigt werden. Der Simulationsbetrieb darf deshalb nur in Rücksprache mit der Framatome GmbH verwendet werden.

5.1.6. Input für die Datenbank

Verschiedene Fassdaten, Messkampagne Daten, sowie die Messdaten selbst werden in einer Datenbank abgelegt (siehe Absatz 15). Über das Hauptmenü (siehe Abbildung 26) gelangt man zum Menü „Fassdaten“. Dort werden Informationen über den Fässer direkt vom Operator eingegeben (z.B. Fassbezeichnung (QR Code), Herkunft, Kunde, Abfallmasse etc). Der Fass QR-Code (Kennung) ist verbindlich für jedes Fass einzugeben. Diesem Code wird durch die Datenbank eine Fass-Id zugewiesen. Dieser Fass-Id werden alle anderen Daten (Fassdaten, Kampagne, Messwerte) zugeordnet. Die weiteren Daten (siehe Abbildung 26) sind optional, sollten jedoch soweit bekannt für jedes Fass eingegeben werden. In obiger Maske (Abbildung 26) können die Daten von einem neuen Fass eingegeben und mit „Fassdaten in DB speichern“ gespeichert werden. Die Fass-ID wird von der Datenbank automatisch vergeben. Bei fehlerhafter Eingabe (z.B. bei Eingabe einer schon vorhanden Fassbezeichnung (Fass-QR-Code) wird der Datensatz mit einer Fehlermeldung abgewiesen: „Fassdaten konnten nicht gespeichert werden, bitte Eingaben überprüfen“.

Abbildung 26: “Fassdaten” Menü in der Quantum GUI.

5.2. AiNT Steuerungs- und Auswertesoftware

Die Software von AiNT für die Steuerung der Messung sowie der Auswertung der Messdaten lässt sich in drei unabhängige Module teilen. Das erste Modul dient der Steuerung des Messequipments sowie der Koordination der Messung und der Datenverwaltung. Dazu muss dieses Modul über das Lynx die HPGe-Detektoren und über das Labview-Interface den Neutronengenerator ansprechen können. Weiterhin muss dieses Modul mit der Framatome-Steuerungssoftware kommunizieren sowie ggf. mit der Software für die Ansteuerung und der Auswertung der Messdaten der He-3-Detektoren sowie der Spaltkammer. Dieses Softwaremodul kann auf der von der Framatome Software genutzten PC betrieben werden. AiNT wird seine Softwaremodule größtenteils in Java implementieren.

Die Auswertung der Messdaten geschieht in einem unabhängigen zweiten Modul. Dieses Softwaremodul muss von dem AiNT Steuerungsmodul mit den notwendigen Mess- und Inputdaten versorgt werden. Die Messergebnisse können direkt in die Datenbank geschrieben werden oder zurück an das Steuerungsmodul gegeben werden, um von dort weiter kommuniziert zu werden. Aufgrund der hohen Hardwareanforderungen bzgl. der Rechenleistung für Teile der Auswertung (insbes. Neutronenflussberechnung bei HPC-Cluster mit ca. 100 Rechenkernen notwendig) wird die Auswertung nachgeschaltet stattfinden und von der Computer-Hardware der QUANTOM-Messanlage losgelöst sein. Ein drittes Softwaremodul leistet eine Plausibilitätsprüfung der stofflichen Beschreibung der Abfallgebinde auf Grundlage der durch die Messung mit QUANTOM gewonnenen Daten zur stofflichen Zusammensetzung. Dieses Softwaremodul wird aktuell in der Programmiersprache JavaScript als eigenständige Webanwendung entwickelt und wird auch unabhängig von den Ergebnissen der Messanlage QUANTOM lauffähig sein. Eine Schnittstelle zum Auslesen der entsprechenden Stofflisteneinträge aus der Datenbank der BGE wird aktuell in Entwicklung.

5.3. FiNT Steuerungs- und Auswertesoftware

Es wird eine Software für die Ansteuerung, die Kontrolle sowie die Auswertung der Messdaten benötigt. Für die Ansteuerung und Kontrolle der He-3-Detektoren sowie der Spaltkammer ist eine

geeignete Nuklearelektronik vorhanden, die über existierende Softwareschnittstellen angesprochen werden kann. Die Verantwortlichkeit für diesen Teil der Software liegt beim Verbundpartner FINT.

5.4. Schnittstelle zwischen den Komponenten

Zwischen den einzelnen Softwarekomponenten müssen Schnittstellen geschaffen werden um Daten auszutauschen. Dazu gehören insbesondere Steuerungsbefehle für einzelne Komponenten der Messanlage sowie Statusinformationen, Eingabedaten, Messdaten und Ergebnisse der Messdatenauswertung. Im Folgenden werden die Art und der Umfang der Eingabedaten (Inputs), der ausgegebenen Daten (Outputs) sowie die Ausgestaltung einzelner Schnittstellen beschrieben.

- **Inputs**

Die Eingaben für die Durchführung einer Messung speisen sich aus drei möglichen Quellen:

- Manuelle Eingabe von Daten über eine entsprechend gestaltete GUI der Framatome Software
- Upload relevanter Daten (Video- oder Fotodaten, etc.) auf den entsprechenden Desktop-PC über eine direkte Verbindung (Ethernet) oder Wechseldatenspeicher (USB, Flash, etc.)
- Direkter Import von Daten aus dem bestehenden Abfallmanagementsystem des Kunden (z. B. AVK, ReVK, KADABRA).

Die GUI muss gestaltet sein um die Eingabe aller relevanten Daten zu ermöglichen. Die Datenaufnahme für das Gewicht (Waage) oder die visuelle Inspektion (Videodaten) kann über eine entsprechende Schnittstelle zu dem entsprechenden Gerät (Wage, Videokamera) erfolgen. Die Geometrie des Abfallgebundes (Abmessungen, Füllhöhe, innere Abschirmungen) kann über ein parametrisiertes Fassmodell über die Angabe einzelner fester Parameter eingegeben werden. Im Folgenden wird eine Auflistung notwendiger oder gewünschter Eingabedaten und der entsprechende Eingabe-/Übertragungsweg angegeben.

Parameter/Datensatz/etc.	Eingabe-/Übergabeweg
Fassidentifikationsnummer	Manuelle Eingabe, Scan von QR-Code etc.
Gewicht	Manuelle Eingabe, Digitale Schnittstelle zur Wägeeinheit
Video Aufnahme des Fasses	Upload per USB Port, digitale Schnittstelle zur Videokamera (Ethernet)
Geometrie der Abfallgebinde mit Füllhöhe und inneren Abschirmungen	Manuelle Eingabe der Parameter über die GUI (basierend auf parametrisiertem Modell des Fasses), Einlesen aus Abfallmanagementsystem des Kunden
Radiologische Charakterisierung	Einlesen aus Abfallmanagementsystem des Kunden
Stoffvektor	Einlesen aus Stoffliste der BGE ggf. Abfallmanagementsystem des Kunden
Sonstiges (Alter, Ursprung, Leermasse der Gebinde, Eigentümer, Matrix Typ, Volumen, etc.)	Manuelle Eingabe über die GUI, Einlesen aus Abfallmanagementsystem des Kunden

Tabelle 3: Übersicht über Inputdaten sowie die entsprechenden Eingabe- oder Übergabewege.

- **Outputs**

Die Software muss nach Beendigung einer Messung eine Reihe unterschiedlicher Daten zurückliefern. Dabei ist zu bedenken, dass diese Rückgabe wahrscheinlich nicht mit Abschluss des Messvorgangs, sondern mit einem gewissen Zeitverzug (insbesondere gilt dies für die Auswertung der Messdaten) erfolgen wird. Im Folgenden wird eine Übersicht gegeben über Ausgabedaten und die entsprechenden Ausgabewege.

Datensatz/Messergebnis/etc.	Ausgabe-/Übergabeweg
Stoffliche Zusammensetzung des Abfallgebundes	Zusammensetzung in die Datenbank, ggf. Übertragung in Abfallmanagementsystem des Kunden
Report (Messprotokoll)	Textdaten oder Dokument in die Datenbank sowie Ausgabe über GUI
Ergebnis der Plausibilitätsprüfung	Dokument und graphische Ausgabe des Tools zur Plausibilitätsprüfung, ggf. in die Datenbank
Rohdaten HPGe-Detektoren (Gamma-Spektrum, Kalibrierung)	Textdaten in die Datenbank
Rohdaten Neutronendetektoren (Zählraten, Kalibrierung)	Textdaten in die Datenbank

Tabelle 4: Übersicht über Outputdaten sowie die entsprechenden Ausgabe- oder Übergabewege.

- **Schnittstellen**

Alle Kanten zwischen einzelnen Komponenten im obigen Schaubild (siehe Abbildung 16) stellen eine Schnittstelle dar, über die Daten ausgetauscht werden können oder müssen. Gestrichelt dargestellte Kanten sind optional, d. h. die entsprechenden Daten können auch auf andren Wegen ausgetauscht werden. Die Entscheidung darüber, welche Schnittstellen implementiert werden sollen, legt zu einem gewissen Teil bereits die Architektur der Gesamtmessanlage QUANTOM fest. Im Folgenden werden die einzelnen Schnittstellen kurz beschrieben.

	Komponente	Zuständiger Projektpartner
1	Framatome Anlagensteuerung & Frontend	Framatome
	AiNT Steuerungs- und Auswertesoftware	AiNT

	Komponente	Zuständiger Projektpartner
2	AiNT Steuerungs und Auswertesoftware	AiNT
	Lynx (HPGe-Detektoren)	AiNT

Das Lynx verfügt über ausgereifte Softwareschnittstellen und kann insbesondere über geeignete Java-Schnittstellen der AiNT-Software angesprochen werden.

	Komponente	Zuständiger Projektpartner
3	AiNT Steuerungs und Auswertesoftware	AiNT
	Labview-Interface (Neutronengenerator)	AiNT

Der Hersteller des Neutronengenerators (Adelphi) stellt ein Labview-Interface zur Steuerung des Gerätes zur Verfügung. Dieses Interface stellt ein eigenständig lauffähiges Programm dar, das jedoch nicht direkt in die Software eingebunden werden kann.

	Komponente	Zuständiger Projektpartner
4	AiNT Steuerungs und Auswertesoftware	AiNT
	FINT Steuerungs- und Auswertesoftware	FINT

Zwischen FINT und AiNT wird abgestimmt, welche Daten sich aus der Auswertung der Messdaten der He-3-Detektoren sowie der Spaltkammer ergeben und in welcher Form diese an die AiNT Software kommuniziert werden.

	Komponente	Zuständiger Projektpartner
5	FINT Steuerungs- und Auswertesoftware	FINT
	Nuklearelektronik	FINT

Die entsprechende Nuklearelektronik verfügt über eine Open Source Schnittstelle, die zur Ansteuerung und zum Auslesen der Daten genutzt wird.

	Komponente	Zuständiger Projektpartner
6	Datenbank	Framatome
	Framatome Anlagensteuerung & Frontend, AiNT Steuerungs- und Auswertesoftware, FINT Steuerungs- und Auswertesoftware	Framatome, AiNT, FINT

Der Umfang und die Art der zu speichernden Daten bestimmen den Aufbau der Datenbank. Für die Datenbank muss eine API geschaffen werden, die eine Kommunikation und insbesondere die Übertragung von Daten aus allen anderen Softwarekomponenten ermöglicht. Diese API wurde zwischen allen Projektpartnern abgestimmt. Weiterhin muss die Hardware (Rechner, Datenverbindung) geeignet sein diesen Datenverkehr unter Berücksichtigung aller Nebenbedingungen (insbesondere an die Datensicherheit) zu ermöglichen.

	Komponente	Zuständiger Projektpartner
7	Datenbank	Framatome
	Abfallmanagementsystem des Kunden (AVK, ReVK, KADABRA)	Framatome

Die Datenbank wird so gestaltet, dass alle vorhandenen und sowohl für die Messung als auch für das Serviceangebot von Framatome relevanten Daten aus dem Abfallmanagementsystem des Kunden eingelesen werden können.

5.5. Automatisierte Spektrenauswertung

Mit der QUANTOM-Messanlage werden pro Messung 48 einzelne Gammaskpektren aufgenommen. Für eine schnelle Auswertung wird ein Verfahren benötigt, das in diesen Spektren zuverlässig automatisiert Peaks identifizieren kann und deren Peak-Fläche berechnet. Ein solches Verfahren wird im Rahmen des Projekts QUANTOM entwickelt [57].

5.5.1. Verfahrensdarstellung

Ausgangspunkt sind die 48 Einzelspektren, von denen jeweils 24 Spektren einem der beiden Detektoren der Messanlage zugeordnet werden. In dem hier erläuterten Verfahren werden die Spektren der beiden Detektoren komplett getrennt voneinander analysiert. Dazu werden zunächst zwei Summenspektren erzeugt, indem die 24 Einzelspektren pro Detektor aufsummiert werden. Auf diesen Summenspektren wird zunächst der Untergrund abgeschätzt, indem ein Smoothing-

Algorithmus verwendet wird, der alle Peaks glättet und aus den Spektren entfernt. Auf Grundlage dieses Untergrunds werden deutliche Peaks identifiziert, deren Peak-Höhe größer als die Unsicherheit des (Compton-)Untergrunds im jeweiligen Kanal ist. In einem nächsten Schritt werden Regions of Interest (RoI) identifiziert. Dazu werden die Spektren so lange unterteilt, bis alle RoI bestimmte Kriterien hinsichtlich Peak-Anzahl und RoI-Größe erfüllen. Dann werden in einem simultanen Fit ein linearer Untergrund und die identifizierten Peaks auf jeder RoI einzeln auf dem vorher abgeschätzten Untergrund gefittet. Dabei werden in jeder RoI iterativ zusätzliche Peaks hinzugefügt, bis das Fitergebnis bestimmten Abbruchkriterien genügt. Darauf aufbauend wird auf den 48 Einzelspektren zunächst ebenfalls einzeln der Untergrund durch einen Smoothing-Algorithmus abgeschätzt. Dann werden die RoI und gefitteten Peak-Positionen aus den Summenspektren auf die Einzelspektren übernommen. Anschließend werden auf jeder RoI in den Einzelspektren der lineare Untergrund und die Peak-Amplituden erneut simultan gefittet. Zusätzlich wird pro Einzelspektrum und RoI ein zusätzlicher Peak gefittet, falls dieser das Fitergebnis verbessert. In Abbildung 27 wird der Ablauf des Verfahrens skizziert.

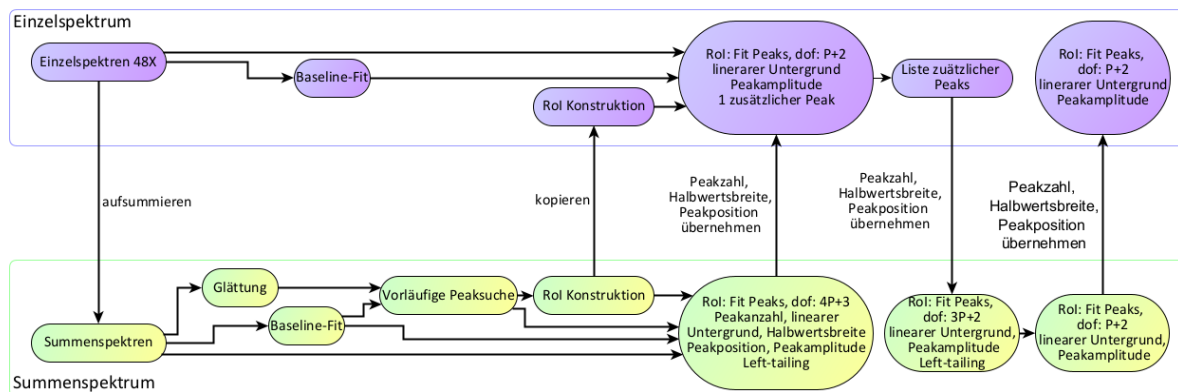


Abbildung 27: Ablaufschema für das Verfahren. Ausgangspunkt sind die 48 Einzelspektren. Die Peaks mit zugehörigen Flächen werden im letzten Schritt im Peak Fitting auf den Einzelspektren bestimmt. Für jeden Fit auf den RoI werden die Freiheitsgrade (dof) angegeben, wobei P die Anzahl der Peaks in der jeweiligen RoI ist.

5.5.2. Initiale Untergrundabschätzung und Peak-Identifikation

Der Untergrund wird auf dem gesamten Summenspektrum der 24 Einzelspektren pro Detektor bestimmt. Dazu werden die gemessenen Daten mehrfach geglättet, wodurch Peaks aus dem Spektrum entfernt werden und nur der gammaspektrometrische Untergrund überbleibt. In einem ersten Schritt wird eine stückweise Glättung mit großen Fenstern verwendet, um die Höhe von Peaks zu reduzieren und statistische Fluktuationen in einzelnen Kanälen auszugleichen. Die Glättung wird dann über die Faltung der Daten mit einer Fensterfunktion (Hann Fenster) erreicht [34][35]. Da sich der Wertebereich des Spektrums (Count-Zahlen pro Kanal) über mehrere Größenordnungen erstreckt, wird für die nächste Glättung der Logarithmus des zuvor geglätteten Spektrums betrachtet. Auf diesen wird ein „Asymmetric Least Squares Smoothing“ angewendet [29] [30], welches iterativ lokale Maxima reduziert, wodurch ein glatter Untergrund auf Höhe der zuvor geglätteten lokalen Minima gebildet wird. Durch Umkehren des Logarithmus, also Bildung der Exponentialfunktion, ergibt sich daraus der finale Untergrund für das gesamte Spektrum. Der Untergrund wird für die Peak-Flächenbestimmung verwendet. Außerdem wird er ebenfalls für die Bestimmung der Messunsicherheiten im Rahmen der

Massenrekonstruktion und für die Berechnung von Erkennungs- und Nachweisgrenzen benötigt, die nach der Spektrenauswertung innerhalb der iterativen Auswertung der Messung durchgeführt werden. Ein Peak-Identifikations-Algorithmus [36] bestimmt dann die Peak-Positionen. Diese geglätteten Daten müssen dabei mindestens 0,1 % größer sein als der zuvor bestimmte Untergrund. Außerdem muss die Prominence des Peaks größer sein als die Hälfte des 99 % Konfidenz Intervalls bezüglich der Poisson Statistik des jeweiligen Kanals:

$$Prominence > 0,5 \cdot (PPF(0.99, N) - N)$$

Hierbei ist PPF die verallgemeinerte inverse Verteilungsfunktion (Percent point function) der Poisson Verteilung [31] und N die Anzahl der Ereignisse des initialen Untergrundes im jeweiligen Kanal.

5.5.3. Erzeugung der Region of Interest (RoI)

Da das Spektrum sich aus einer hohen Zahl an Kanäle (typischerweise 16.384) zusammensetzt und sich der Wertebereich über mehrere Größenordnungen erstreckt, ist ein globaler Fit auf dem gesamten Spektrum nicht möglich, bzw. liefert keine verlässlichen Ergebnisse. Daher wird das Spektrum in kleine Bereiche, sogenannte RoI (= Region of Interest), unterteilt, in denen sich jeweils Untergrund und Signale gut bestimmen und trennen lassen. Dies geschieht iterativ, wobei mit dem gesamten Spektrum gestartet wird. Der Kanal mit dem kleinsten Gewicht wird dann als Grenze gewählt sodass darüber und darunter zwei neue RoI gebildet werden. Die ersten beiden Gewichte sorgen dafür, dass die Bereiche um einen Peak, an deren Flanken die Ableitung besonders hoch ist, hohe Werte bekommen. Das dritte Gewicht fügt den niedrigsten und höchsten Kanälen einer RoI höhere Gewichte hinzu, was eine Trennung in der Mitte der RoI bevorzugt. Das letzte Kriterium verhindert RoI ohne initialen Peak. Neue RoI werden so lange erzeugt, bis entweder 500 RoI erzeugt wurden, oder alle RoI mindestens eine der folgenden Bedingungen erfüllen:

- Maximal 40 Kanäle und maximal 3 Peaks
- Nur ein Peak in der RoI
- Die neue Grenze würde eine RoI erzeugen, die weniger als 20 Kanäle groß ist
- Der Abstand der neuen Grenze zu einem Peak ist kleiner als 2 Kanäle und maximal 3 Peaks

5.5.4. Peak-Fitting auf Summenspektren

Auf jeder RoI des Summenspektrums werden nun Untergrund und Signal gefittet, um Peak-Positionen und Peak-Breiten festzulegen. Für das Signal wird eine Peak-Form einer Gauß-Verteilung mit zusätzlichem Left-Tailing verwendet [32]. Der Untergrund in der RoI wird durch einen zusätzlichen linearen Term auf den global abgeschätzten Untergrund gefittet. Dieser wird simultan mit der Anzahl an initialen Peaks an die Daten gefittet. Zur Minimierung in der least squares Methode wird ein Trust Region Reflective Algorithmus [33] verwendet. Insgesamt werden bei einem Fit mit m Peaks $4m + 3$ Variablen gefittet. Pro Peak vier Variablen, darunter die Amplitude, die Position und der jeweilige Anteil des Left-Tailings. Hinzu kommen eine Peak-Breite, die für alle Peaks in einer RoI gefittet wird und die zwei Parameter für den linearen Untergrund.

5.5.5. Analyse der Einzelspektren

Auf den Einzelspektren wird zunächst jeweils global der Untergrund abgeschätzt. Dazu werden die gleichen Glättungsschritte durchlaufen, wie auf dem Summenspektrum. Dann werden die RoI und gefitteten Peaks des Gesamtspektrums für die Einzelspektren übernommen. Auf jeder RoI wird ein weiterer Fit durchgeführt, bei dem der lineare Untergrund zusammen mit der absoluten und relativen Peak-Höhe (Parameter A_i und T_i) gefittet wird. Alle anderen Parameter der Peaks werden auf die Ergebnisse des Fits im Summenspektrum fixiert, um weniger sensitiv auf mögliche statistische Fluktuationen in den Einzelspektren zu sein. Wenn das normierte χ^2 nach dem Fit nicht kleiner als zwei ist, wird der Fit einmal wiederholt und dabei ein zusätzlicher Peak gefittet. Für die zusätzliche Peak-Position wird der Kanal verwendet, in dem die größte relative Abweichung zwischen Messwert und Fitergebnis liegt. Wenn keines der folgenden Kriterien erfüllt sind, wird das Ergebnis mit zusätzlichem Peak verwendet, andernfalls das Ergebnis ohne zusätzlichen Peak:

- Die Anzahl freie Parameter ist größer als die Anzahl Kanäle,
- Das normierte χ^2 hat sich um mehr als einen Faktor 2 vergrößert,
- Die Position des neuen Peaks ist näher als 1σ an der Position eines alten Peaks.

5.5.6. Peak-Zuordnung

In dem zuvor erläuterten Verfahren zur Spektrenauswertung werden viele Peaks erkannt und gefittet. Diese müssen nun als Photopeaks erkannt und den bekannten Gamma-Linien aus der Literatur zugeordnet werden. Um die Anzahl der Entscheidungen der Auswahl von verschiedenen Linien zu einem Peak zu verringern, wird zunächst das gesamte Spektrum betrachtet und Elemente identifiziert, die anhand der gefundenen Peaks klar zu erkennen sind. Nur für diese Elemente wird in einem folgenden Schritt überprüft, ob die gefundenen Elemente im erwarteten Größenverhältnis zueinanderstehen und somit als Gamma-Linie des Elements zu erkennen sind. Nur wenn genügend Linien einem Element zugeordnet werden können, wird dieses Element als gefunden gewertet. Von diesen gefundenen Gamma-Linien werden pro Element maximal 2 Linien gewählt, die das größte Peak-zu-Untergrund-Verhältnis haben und somit die präziseste Massenbestimmung zulassen. Input für die Zuordnung sind eine Liste mit allen Gamma-Linien der Elemente, jeweils eine Liste mit gefitteten Peaks pro Detektor aus der Spektrenauswertung und eine Liste mit erwarteten Untergründereignissen in Abhängigkeit von der Energie. Die Liste der Gamma-Linien enthält neben der Energie auch das Produkt aus partiellem Wirkungsquerschnitt, Photopeak-Effizienz und Neutronenfluss. Eine genauere Untergrundabschätzung ist hier nicht notwendig, da diese Werte nicht in Flächenberechnungen eingehen, sondern lediglich als Abschätzung der zu erwartenden Signalstärke von Gamma-Linien dient.

5.5.7. Elementidentifikation und Verifikation

Zunächst sollen anhand der gefitteten Peaks alle Elemente identifiziert werden, die mit den gefundenen Peaks kompatibel sind. Dazu müssen alle signifikanten Gamma-Linien einem Peak zugeordnet werden können. In einem ersten Schritt wird pro Element und Gamma-Linie der Wert $W = \frac{A_i}{\sqrt{B_i}}$ gebildet. Hier ist A_i ist erwartete relative Peak-Fläche und B_i der erwartete Untergrund bei der Energie der Gamma-Linie. Als Kriterium dafür dient die Energiedifferenz zwischen Literaturwert

für die Gamma-Linie und gefitteter Peak Energie. Die Differenz zwischen beiden Energien muss kleiner als die gefittete Peak-Breite σ sein, damit die Linie und der Peak als kompatibel gewertet werden. Anschließend wird für alle Linien eines Elements, die einem Peak zugeordnet werden konnten die Summe W_{match} aus den Werten W gebildet und durch die Summe aller Werte W_{sum} geteilt. Dieser Score $s = \frac{W_{match}}{W_{sum}}$ ist somit ein Maß dafür, wie viele der zu erwartenden Peaks im Spektrum für ein Element gefunden wurden. Wenn der Score größer als 0,9 ist, gilt ein Element im ersten Schritt als vorhanden. Um zu verifizieren, dass die gefundenen Peaks wirklich zu einem Element gehören, werden die gefitteten mit den erwarteten relativen Peak-Flächen pro Element verglichen. Da die partiellen Wirkungsquerschnitte in der Literatur für jedes Element bekannt sind, lässt sich mithilfe des Neutronenflusses und der Photopeak-Effizienz, der jeweiligen Photonen Energie, die erwartete Peak-Fläche für jede Gamma-Linie berechnen. Diese Erwartungen lassen sich dann für verschiedene Gamma-Linien eines Elements vergleichen. Abweichungen von der Erwartung werden vor allen durch Interferenzen mit anderen Gamma-Linien verursacht, oder wenn die gefundenen Peak-Flächen nicht durch das jeweilige Element, sondern durch andere Effekte verursacht wurden. Erstes Kriterium dafür ist der Wert W einer Linie, wobei die Linie mit dem größten W gewählt wird, da dieser die präziseste Peak-Flächenbestimmung verspricht. Eine Ausnahme davon ist, wenn der Linie mit dem größten W mehrere Peaks zugeordnet werden können. Lediglich wenn alle zugeordneten Gamma-Linien eines Elements mehreren Peaks zugeordnet werden können, wird die Linie mit dem größten W als Referenz gewählt und ihr der Peak zugeordnet, der die geringste Energiedifferenz zu der Energie der Gamma-Linie hat. Die automatische Spektrenanalyse wurde mit allen im Projekt QUANTOM zur Verfügung stehenden Messdaten getestet. Es werden in keiner Auswertung Ergebnisse gefunden, die auf einen Fehler in der Methode hindeuten. Erwartete Verteilungen von Elementmassen stimmen mit denen der jeweiligen Elemente zugeordneten Peak-Flächen gut überein.

5.6. Iterative Massenrekonstruktion (IMR)

5.6.1. Grundlage der Massenrekonstruktion

Die mathematische Methodenentwicklung der iterativen Massenrekonstruktion ist in Kapitel 6 beschrieben.

5.6.2. Softwarelösung zur iterativen Auswertung - IMR

Da die QUANTOM-Messanlage in Zukunft im teilautomatischen Betrieb mehrere Fässer pro Tag messen soll, wird eine möglichst vollständig automatisierte Auswertesoftware benötigt, die die ansonsten zeitaufwändige manuelle Spektrenauswertung, Parametersimulation und Massenrekonstruktion steuert und durchführt. Gleichzeitig muss diese Software dem Auswerter auch die Möglichkeit geben, die komplexe Auswertung in allen Phasen zu kontrollieren und steuernd und korrigierend in die Auswertung eingreifen zu können. Die Softwarelösung wurde im Rahmen von QUANTOM mit der Name „Iterative Mass Reconstruction (IMR)“ entwickelt. Beschrieben wird folgend die Unterteilung der Software in einzelne Module, deren Zusammenspiel als zusammenhängende Software sowie die technische Ausgestaltung dieser Softwarelösung.

- **Softwarearchitektur**

Im Rahmen einer Messung mit der QUANTOM-Messanlage werden Messdaten aufgenommen und von der Steuerungssoftware in einem standardisierten Format in einer Datenbank gespeichert. Messungen sind eindeutig über eine Kombination aus Fass-ID und Messungs-ID identifizierbar. Über einen PEAK Client auf einem Desktop-PC legt der Auswertende eine Auswertung zu einem gewählten Datensatz aus der Datenbank an. Die Auswertung wird von IMR auf dem AiNT Cluster durchgeführt und gesteuert, über den PEAK Client kann zu jedem Zeitpunkt der aktuelle Stand kontrolliert werden. An der iterativen Auswertung der QUANTOM Messungen sind im Kern die folgenden Softwaremodule beteiligt:

- **Automatisierte Spektrenauswertung** (siehe Abschnitt 5.5)
- **SPARC** (siehe Abschnitt 3.1).
- **TRACER**: berechnet die Photopeak-Effizienzen in allen Partitionen des Fasses für alle 48 Einzelmessungen (detektorspezifisch) innerhalb jeder Iteration auf Grundlage der aktuell gültigen Elementverteilung, des Fassmodells der Messung und der validierten Detektormodelle.
- **Softwaremodul zur Berechnung der partiellen WQ**: faltet in jeder Iteration die von SPARC berechneten Neutronenspektren mit den hinterlegten mikroskopischen Neutronenabsorptions-Wirkungsquerschnitten zur Berechnung der Gamma-Linien spezifischen partiellen Wirkungsquerschnitte für die Massenrekonstruktion.
- **Softwaremodul Massenrekonstruktion**: Rekonstruiert in jeder Iteration für jedes Element die Elementmassenverteilung in den 336 Partitionen des virtuellen Fassmodells und überprüft die Konvergenz des iterativen Verfahrens. Nach der finalen Iteration werden für vorgegebene Gamma-Linien die charakteristischen Grenzen (Erkennungs-, Nachweisgrenze) berechnet.

Der Aufbau der Gesamtsoftware zur Auswertung von QUANTOM Messungen ist in der folgenden dargestellt [59].

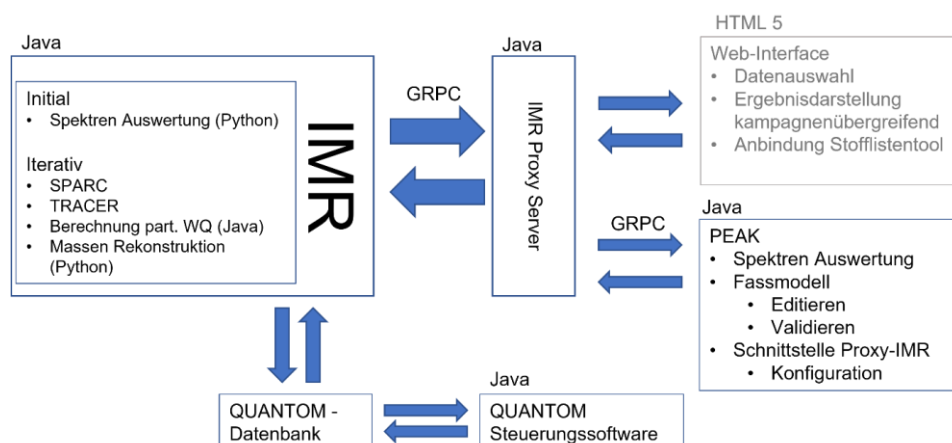


Abbildung 28: Architektur der Auswertesoftware für QUANTOM Messungen.

Den iterativen Ablauf dieser Schritte steuert der Softwaremodul IMR. Die Schnittstelle zwischen den Modulen wird über den Fileaustausch auf einer vorgegebenen Ordnerstruktur und einer Benennungskonvention für alle Files definiert. Die Zwischenergebnisse der iterativen Auswertung sowie die finalen Ergebnisse werden in dieser internen Ordnerstruktur gespeichert. Eine Schnittstelle zur QUANTOM Datenbank wird nur genutzt, um initiale Fassdaten zu laden und am Ende die Ergebnisse

der letzten Iteration zu speichern. Zusätzlich dazu wird ein Web-Interface zur Verwaltung und Darstellung der Ergebnisse geschaffen. Darüber geschieht auch die Anbindung zum in der Entwicklung befindlichen Stofflistentool. Das Web-Interface beinhaltet ausschließlich zusätzliche Funktionalitäten und ist kein integraler oder notwendiger Teil der iterativen Auswertung.

- **Technische Umsetzung**

Die IMR Software und sämtliche in der iterativen Auswertung eingebundenen Softwaremodule werden auf dem AiNT Cluster betrieben. IMR selbst ist in der Programmiersprache Java implementiert. Der IMR Proxy Server läuft auf einem AiNT Server als virtuelle Maschine (nicht auf dem Cluster installiert) und ist sowohl im AiNT Netzwerk als auch über das Internet angebunden. Er wird in Java implementiert und ermöglicht die Kommunikation der Auswertesoftware zu Rechnern außerhalb des AiNT Netzwerkes. Eine Version der PEAK Software (PEAK Client, als Java Executable) kann auf einem beliebigen Rechner mit Microsoft Windows ab Version 7 und einer Internetverbindung betrieben werden. Über das Internet werden Daten mit dem IMR Proxy Server ausgetauscht. Auf die Art und Weise werden Status und Ergebnisse der (laufenden) iterativen Auswertung heruntergeladen, Auswertungen initiiert und überprüft oder angepasste Spektrenauswertungen zurück zur IMR geschickt. PEAK und der IMR Proxy Server sowie IMR kommunizieren dafür jeweils über eine gRPC Schnittstelle. Softwarelösung wird zum 30.11.2022 in Version 1.0 Teil-veröffentlicht. Das Laufzeitverhalten der iterativen Auswertung auf dem AiNT Cluster wird auf Grundlage der Version 1.0 untersucht und Maßnahmen abgeleitet, um die Rechengeschwindigkeit nochmals deutlich zu erhöhen mit einem Zielkorridor von 4-10 Stunden pro vollständiger iterativer Auswertung.

6. AP6: Mathematische Methodenentwicklung

Bei der QUANTOM-Messanlage um die Unsicherheiten bezüglich der inhomogenen Befüllung der zumessenden Fässer zu verringern, wird im Rahmen der PGNAA segmentierte Messungen durchgeführt und an diskreten Positionen Gamma-Spektren aufgenommen. Um die Signale aus benachbarten Messungen zu trennen, ist eine räumliche Rekonstruktion der Elementmassen aus den durchgeführten Einzelmessungen notwendig. Diese Aufgabenstellung ist vergleichbar mit einer Tomographie, nur dass in dieser Anwendung Elementanteile orts aufgelöst bestimmt werden [56]. Durch der Neutronenaktivierung werden charakteristische Prompt-Gamma-Signale gemessen, die mittels in Abschnitt 5.5 dargestellter automatischer Spektrenauswertung analysiert werden. Die ausgewertete Nettopeak-Zählrate P_R^i einer Prompt-Gammalinie ist durch das mathematische Modell zu bestimmen [37]:

$$(P_R^i)_{E_\gamma} = \frac{N_A}{M_l} \cdot \int_0^\infty \int_V m_l(\underline{x}) \cdot \varepsilon_{E_\gamma}^i(\underline{x}; D(\underline{x})) \cdot \sigma_{E_\gamma}^i(\underline{x}; E; D(\underline{x})) \cdot \Phi^i(\underline{x}; E; D(\underline{x})) d\underline{x} dE,$$

wobei

- E die Neutronenenergie ist,
- E_γ die Gamma-Energie der entsprechenden Gamma-Linie ist,
- N_A die Avogadrokonstante ist,
- M_l die molare Masse des l -ten Elementes darstellt,
- $\varepsilon_{E_\gamma}^i$ die orts aufgelöste Photopeak-Effizienz für die Energie E_γ ,

- $\sigma_{E_\gamma}^i$ der orts aufgelöste Wirkungsquerschnitt für die (n, γ) -Reaktion,
- Φ^i die Neutronenflussverteilung im Fass darstellt.

Die **Wirkungsquerschnitte** $\sigma_{E_\gamma}^i$ für die (n, γ) -Reaktion im Sektor i werden dann für jede Gamma-Linie gebildet durch die gewichtete Summation der Wirkungsquerschnitte der einzelnen Elemente:

$$\sigma_{E_\gamma}^i(E) = \sum_l \sigma_l(E) \cdot \rho^i \cdot \frac{\overline{m}_l^i}{\overline{m}^i}.$$

Für alle ausgewerteten Gammalinien (Anzahl K) und an allen Messpositionen bzw. Sektoren ergeben sich somit $K \cdot 48$ Integralgleichungen. Bei realistischen $K = 100$ ausgewerteten Gamma-Linien ergibt das ein System von etwa 4800 Gleichungen, die durch die Abhängigkeit der Parameter von der elementaren Zusammensetzung alle gekoppelt sind. Schreibt man alle aufgenommenen Peak-Zählraten in einen Vektor $\mathbf{P} \in \mathbb{R}^K$ sowie die Parameter in entsprechende Vektoren $\boldsymbol{\varepsilon}$ (Photopeakeffizienzen), $\boldsymbol{\sigma}$ (Wirkungsquerschnitte) und $\boldsymbol{\Phi}$ (Neutronenflussverteilungen), so lässt sich obere Gleichung schreiben als

$$\mathbf{P} = \mathbf{A}(\boldsymbol{\varepsilon}, \boldsymbol{\sigma}, \boldsymbol{\Phi}) \mathbf{D},$$

wobei \mathbf{A} der Operator ist, der auf die Zusammensetzung \mathbf{D} angewendet die beobachteten Zählraten erzeugt. Es gilt dabei

$$\mathbf{A} = \mathbf{A}(\mathbf{D}), \quad \text{wegen } \boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{D}), \boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\sigma}(\mathbf{D}), \boldsymbol{\Phi} = \boldsymbol{\Phi}(\mathbf{D}).$$

Es ist zu beachten, dass der Operator \mathbf{A} aufgrund dieses Zusammenhangs nicht linear ist.

Das Modell für die **Neutronenzählraten** in den Neutronendetektoren (mit Laufindex h und physischem Volumen V_d^h) lautet:

$$R_h^i = \int_0^\infty \int_{V_d^h} \varepsilon_n^h(\underline{x}) \cdot \rho_n \cdot \sigma_{^3\text{He}}(E) \cdot \Phi^i(\underline{x}, E; D(\underline{x})) d\underline{x} dE,$$

wobei:

- $D(\underline{x})$ die räumlich aufgelöste Elementverteilung ist,
- $m_l(\underline{x})$ die Dichteverteilungen der Elementmasse des l -ten Elementes im Fass ist,
- E die Neutronenenergie ist,
- E_γ die Gamma-Energie der entsprechenden Gamma-Linie ist,
- N_A die Avogadrokonstante ist,
- M_l die molare Masse des l -ten Elementes darstellt,
- $\varepsilon_{E_\gamma}^i$ die orts aufgelöste Photopeak-Effizienz für die Energie E_γ ,
- $\sigma_{E_\gamma}^i$ der orts aufgelöste Wirkungsquerschnitt für die (n, γ) -Reaktion,
- Φ^i die Neutronenflussverteilung im Fass darstellt.

Inverses Problem: für die Formulierung der hier vorgestellten Aufgabenstellung als inverses Problem wird es auf Grundlage der zuvor eingeführten Notation als Optimierungsproblem geschrieben. Dieses

Optimierungsproblem lässt sich analytisch nicht lösen, weil nahezu alle Gleichungen (> 5000) über die Abhängigkeit der Messparameter von der elementaren Zusammensetzung der Probe, die ja gerade bestimmt werden soll, gekoppelt sind. Eine einfache Strategie, wie diese Gleichungen entkoppelt werden können, besteht in einem iterativen Ansatz der Lösung des inversen Problems. Die Voraussetzungen für die Durchführung des iterativen Verfahrens werden folgt aufgelistet:

- die Peak-Zählraten aus der Auswertung der Gamma-Spektren werden bzgl. des aktiven Untergrundes und interferierender Signale korrigiert;
- die in der Fassmatrix in signifikantem Anteil enthaltenen Elemente liefern ein auswertbares Signal. Der Anteil der nicht durch die PGNAA bzw. die QUANTOM Anlage erkennbarer Elemente (z. B. Kohlenstoff und Sauerstoff) wird modelliert (über Annahme maximaler Oxidationsstufe bzw. Auffüllen der Restmasse);
- die Voraussetzungen für die Verwendung der eingebundenen physikalischen Daten (energieaufgelöste Wirkungsquerschnitte, Gamma-Emissionswahrscheinlichkeiten der Gamma-Linien) liegen vor;
- die Berechnung der Neutronenflussspektren mittels der SP_3 -Approximation ist auf dem AiNT Cluster in vertretbarer Zeit mit dem verfügbaren Arbeitsspeicher möglich;
- der totale Neutronenfluss wird in jedem Sektor bestimmt. Der aktuelle Ansatz dazu (heuristischer Ansatz) wird beschrieben:
 - Rekonstruktion des totalen Flusses in den Sektoren aus den Messdaten der Neutronendetektoren;
 - Simulation des Neutronenflusses in den Sektoren und an den Neutronendetektorpositionen mittels MCNP oder SPARC, wird mit der Quellstärke des NG skaliert werden, also wird dann eine (messtechnische) Methode zur Bestimmung der Quellstärke des NG benötigt (Skalierung auf simulierte Flüsse an den Neutronendetektorpositionen oder Einsatz einer Spaltkammer).

Diskretisierung mit zusätzlicher Radialunterteilung: Um eine einfache Diskretisierung des Fassvolumens vorzunehmen, werden die betrachteten Oberflächensegmente linear bis zur Zylinderachse fortgesetzt. Die sich ergebenden Sektoren haben dann die Form von Kuchenstücken, verteilt auf vier jeweils gleichhohe Höhensegmente (siehe Abbildung 29).

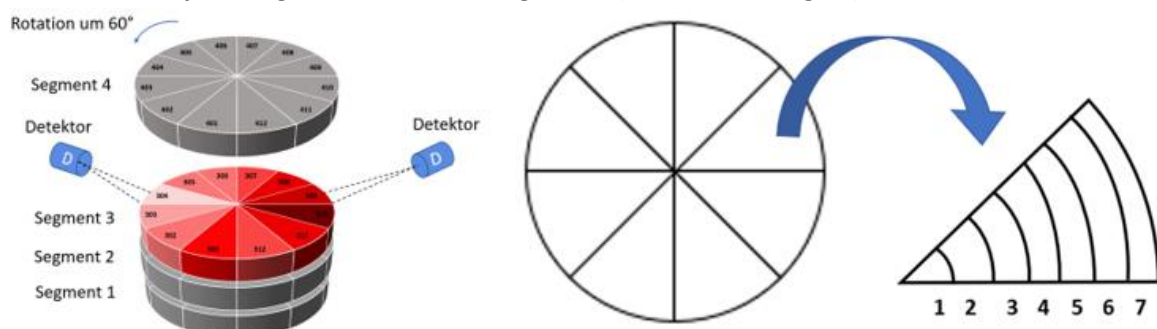


Abbildung 29: Links: Darstellung der Diskretisierung und des Messablaufs der QUANTOM-Messanlage. Rechts: Beispielhafte Darstellung einer Diskretisierung der Fassgeometrie in der Radialebene. Die weitere Unterteilung entlang der radialen Richtung erfolgt bzgl. gleicher Radialabstände. Für die Auswertung der Messungen der vier radioaktiven Abfallfässer wurde eine äquidistante Unterteilung der Radialabstände in sieben Radialsektoren vorgenommen.

Im Rahmen dieser Validierungskampagne wurde eine fixe Diskretisierung der Fassmatrix gewählt, die sich innerhalb der Auswertung als hinreichend fein herausgestellt hat:

- Unterteilung in 4 Höhensegmente (Layer) à 12 Sektoren (vgl. Abbildung 29 links),
- Zusätzliche 7-fache äquidistante Radialunterteilung (vgl. Abbildung 29 rechts).

Damit ergeben sich insgesamt 336 Radialpartitionen, für die jeweils alle Messparameter berechnet werden müssen.

Massenrekonstruktion: Fügt man alle zu einer Gamma-Linie oder zu einem Element gehörigen Gleichungen zusammen, so ergibt sich ein lineares Gleichungssystem, welches numerisch gelöst werden kann. Die diskretisierte Massenverteilung des l-ten Elementes kann berechnet werden durch die Lösung des Optimierungsproblems, das durch verschiedene mathematische Optimierungsalgorithmen effizient gelöst werden. Wir verwenden den L-BFGS-B Algorithmus [42], der erfahrungsgemäß die stabilsten Ergebnisse liefert.

Iterative Auswertung: Das beschriebene Verfahren wird iterativ ausgeführt in den folgenden Schritten:

- 0.) Wahl einer initialen Zusammensetzung auf Grundlage der vorliegenden Informationen und der Wägung der Fässer
- 1.) Berechnung der orts aufgelösten Photopeak-Effizienzen und Neutronenspektren im Fass auf Grundlage der aktuellen Zusammensetzung
- 2.) Massenrekonstruktion mit den Daten aus 1.)
- 3.) Korrelation von Kohlenstoff und Sauerstoffanteilen für jeden Sektor wie folgt:
 - a. Berechnung der Masse je Partition und Vergleich mit der auf Grundlage der angenommenen Schüttdicht und Oxidationsstufen erwarteten
 - i. Masse in Partition über der erwarteten: Skalierung aller Massen auf die in der Partition erwarteten
 - ii. Masse in Partition unter der erwarteten: Auffüllen der Differenz mit CO₂
- 4.) Zurück zu 1.)

Die Iteration wird gestoppt, sobald sich die relative Zusammensetzung von einer Iteration zur nächsten pro Element und Sektor nur noch um weniger als 1 % der Masse (bezogen auf die Gesamtmasse) ändert.

7. AP7: Methode zur Identifizierung chemischer Verbindungen

Im Endlagerungsverfahren KONRAD erfolgt die stoffliche Beschreibung und Deklaration über ein System von Stoffvektoren, wobei die Abführungs-/Ablieferungspflichtigen für die stoffliche Beschreibung ihrer Abfälle eigenverantwortlich sind. Die stoffliche Beschreibung eines Abfallgebundes, welches eine endzulagernde Einheit darstellt, besteht aus der Spezifikation der Abfallmatrix mittels eines oder mehrerer Stofflisteneinträge und der Nennung von einem oder mehrerer Behältereinträge. Zur Erstellung und Verwaltung von stofflichen Beschreibungen von Abfallkontingenten soll eine Softwarelösung entwickelt werden, welche diese mit den existierenden Stofflisteneinträgen und Behältern aus der Stoffliste Konrad realisiert. Die Zielstellung des Softwaretools ist es einerseits eine stoffliche Beschreibung aus den Stofflisteneinträgen und den Behältereinträgen zusammenzustellen,

zu archivieren und im Nachhinein editierbar zu machen und andererseits durch eingeleseene Messdaten eine stoffliche Beschreibung als plausibel zu bestätigen. Die Plausibilitätsprüfung erfolgt indem der Toleranzbereich der Elementzusammensetzung der stoffliche Beschreibung Messwerten gegenübergestellt werden. Im ersten Entwicklungsschritt soll diese Gegenüberstellung rein grafisch erfolgen.

7.1. Softwarekonzept für Stofflistentool

Die Softwarelösung soll plattformunabhängig als Webanwendung realisiert werden. Entsprechend wird das Nutzerinterface mit Hilfe von HTML5 entwickelt. Außerdem sollen die stofflichen Beschreibungen als Projekte gespeichert werden können, sodass man diese wieder verwenden beziehungsweise editieren kann. Die Daten aus der Stoffliste Konrad werden extern im JSON-Format bereitgestellt. Die Kommunikation mit einem Server zur Speicherung und Verwaltung des Projekts erfolgt nach der REST-Architektur. Dabei soll dieser Server in Java mit dem Framework "Spring" implementiert werden. Für folgende Datenstrukturen (siehe Abbildung 30) wird das JSON-Format verwendet, dieses ein menschenlesbares Format und der Standard bei JavaScript sowie Webanwendungen ist:

- Im Stofflistentool können beliebig viele Benutzer erstellt werden
- Ein Benutzer kann beliebig viele Kampagnen anlegen
- Eine Kampagne besitzt beliebig viele Abfallgebinde
- Ein Abfallgebinde besitzt genau eine Masse
- Eine Kampagne hat beliebig viele Stofflisteneinträge
- Ein Stofflisteneintrag kann auf PFB-Stoffe heruntergebrochen werden
- Stofflisteneinträge verweisen auf weitere Stofflisteneinträge oder auf PFB-Stoffe. Diese Verweise besitzen Angaben zur zulässigen relativen Masse.

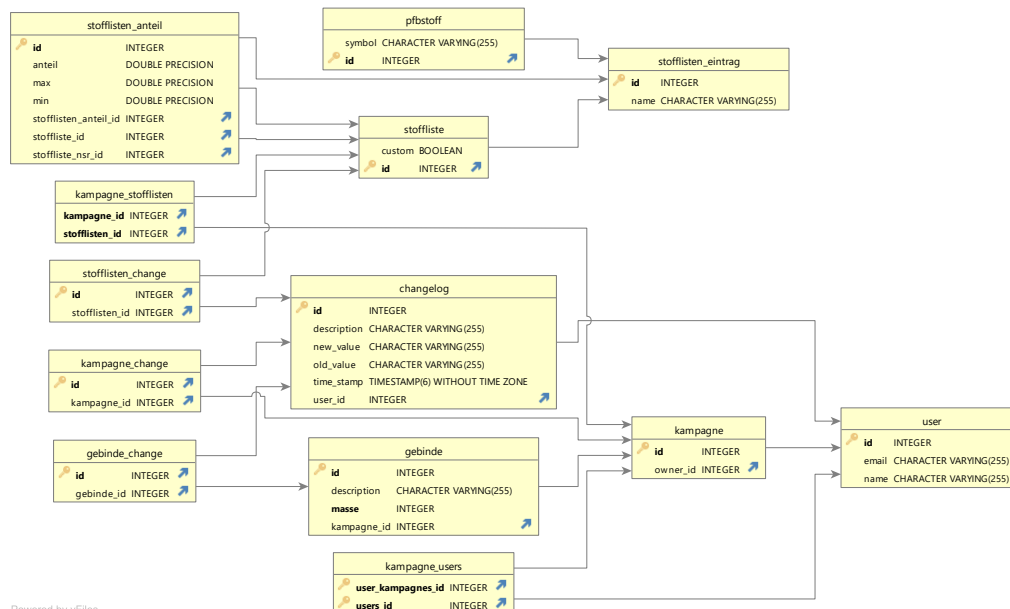


Abbildung 30: Skizze der im Stofflistentool verwendeten Datenstruktur

7.2. Entwicklungsschritte

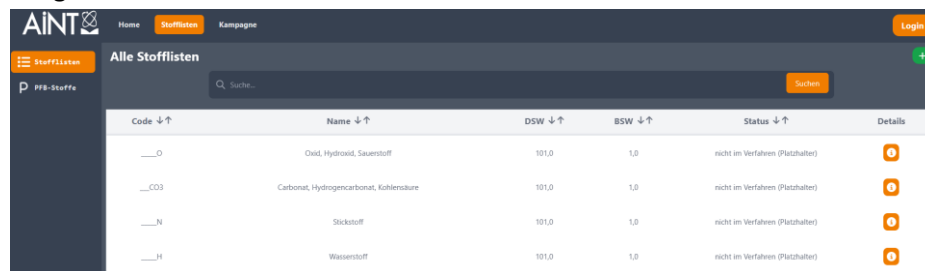
Die Softwareentwicklung wird in folgenden Arbeitsschritten verteilt:

1. Spezifikation Datenformate: Festlegung Datenformate für Nutzer Kampagne, Abfallgebinde, Stofflisteneinträge, etc; Dokumentation in Diagrammen
2. Benutzerinterface: für Design des Interfaces wird HTML-Dokumentstruktur verwendet; Funktionen werden entwickelt für Erstellung bzw. Verwaltung von Kampagnen, Abfallgebinden, Stofflisteneinträgen etc.
3. Datenverarbeitung: Synchronisierung mit Datenbank; Einlesen der Stofflisteneinträge; Runterbrechen auf PFB-Stoffe; Berechnung der zulässigen Massen; Einlesen von Messergebnissen; Analyse und Validierung der Ergebnisse; Visualisierung der Ergebnisse ; Exportieren der Ergebnisse (Boxplots & Bericht als PDF)

7.3. Entwicklungsstand

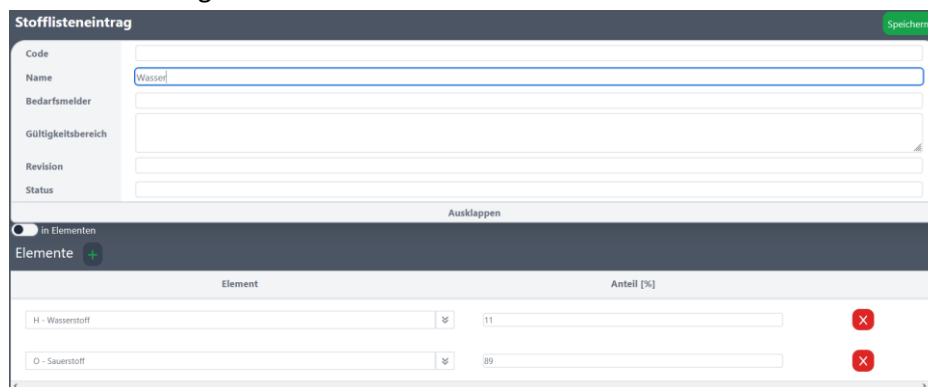
Der aktuelle entwicklungsstand beinhaltet folgende Funktionalitäten:

1. Beim Starten der Software werden alle hinterlegten Stofflisteneinträge sowie PFB-Stoffe in die Datenbank geladen.



Code	Name	DSW	BSW	Status	Details
___O	Oxid, Hydroxid, Sauerstoff	101,0	1,0	nicht im Verfahren (Platzhalter)	
___CO2	Carbonat, Hydrogencarbonat, Kohlensäure	101,0	1,0	nicht im Verfahren (Platzhalter)	
___N	Stickstoff	101,0	1,0	nicht im Verfahren (Platzhalter)	
___H	Wasserstoff	101,0	1,0	nicht im Verfahren (Platzhalter)	

2. Eigene Stofflisteneinträge können erstellt werden.



Code	Name	Bedarfsmelder	Gültigkeitsbereich	Revision	Status
	Wasser				

Element	Anteil [%]
H - Wasserstoff	11
O - Sauerstoff	89

3. Kampagnen inklusive Abfallprodukte können angelegt werden.



Im aktuellen entwicklungsstand sind folgende Funktionalitäten bis Ende der Projektlaufzeit noch nicht ganz oder nur zum Teil implementiert: 1. Runterbrechen Stofflisten auf PFB-Stoffe; 2. Benutzer Verwaltung; 3. Einlesen, Visualisierung, Validierung und Export der Messergebnisse.

8. AP8: Neutronenspektrometrie- und Neutronenflussmessung

8.1. Konzept Neutronenflussmessung

Im Antrag war davon ausgegangen worden, dass zur Normierung die Fluenz an einer geeigneten Stelle gemessen werden und dann über Kalibrierkonstanten die Normierung erreicht werden kann. Im Kick-Off Meeting hatte AiNT jedoch dargelegt, dass eine orts aufgelöste Messung der Fluenz für die Auswertung der Fassmessungen einen wesentlichen Vorteil birgt. Hierzu mussten mehrere Detektoren an verschiedenen Punkten um das Fass platziert werden. Aus Konstruktionsgründen konnten diese nur innerhalb des Polytetrafluorethylen-Mantels (PTFE) der Fass-Cavity mit einer Wandstärke von ca. 3 cm untergebracht werden, was die Größe deutlich einschränkt. Für die anvisierte Auswertung der Einzelmessungen waren 16 bis 32 Kanäle notwendig. Wie in den Anforderungen beschrieben war mit Flüssen bis zu $1,2 \times 10^6 \text{ n} / (\text{s} \cdot \text{cm}^2)$ zu rechnen. Um die Zählraten trotzdem in einem Bereich zu halten, in dem keine Totzeit auftritt oder in dem eine Totzeitkorrektur noch ohne große Unsicherheiten möglich ist, darf die Sensitivität des Detektors einen Wert von maximal 0,04 cps/nv besitzen. Als einziger preislich infrage kommender Detektor wurde die Variation eines ^3He -Zählrohrs mit vermindertem ^3He -Partialdruck evaluiert. Anhand von MCNP-Simulationsrechnungen konnte für einen ^3He -Partialdruck von 0,5 bar die geforderte Detektorsensitivität abgeschätzt werden. Das weitere Detektorkonzept wurde auf Basis dieses Detektors mit SHV-Steckverbindern entwickelt.

Für die Messelektronik wurde ein System mit zwei Frontend-Elektroniken MSTD-16 in der Stand-Alone-Version, einer Auswerteeinheit MCPD-8 und einem Messrechner zur Datensammlung und Steuerung ausgewählt, wie in Abbildung 31 gezeigt. Mit den beiden MSTD-16 waren Eingänge für maximal 32 Detektoren vorhanden. Für die Positionierung der Detektoren in der PTFE-Schicht rund um die Messkammer wurden verschiedene Anordnungen mit unterschiedlichen Zahlen und Positionen der Detektoren anhand der simulierten Effizienz sowie praktischer Überlegungen bewertet. Es wurden die Neutronenflüsse für verschiedene Füllmaterialien des Fasses sowie verschiedene Füllstände berechnet und daraus die zu erwartenden Zählraten der Detektoren abgeschätzt. Dann wurden mithilfe eines einfachen Modells die Neutronenflüsse in den Segmenten des Fasses aus den simulierten Zählraten berechnet. Aus dem Vergleich dieser Flüsse mit den aus der Simulation erhaltenen Flüssen wurden die am besten geeigneten Detektoranordnungen bestimmt (Abbildung 32). Die entsprechenden Arbeiten dazu wurden in [61][62][63] dokumentiert.

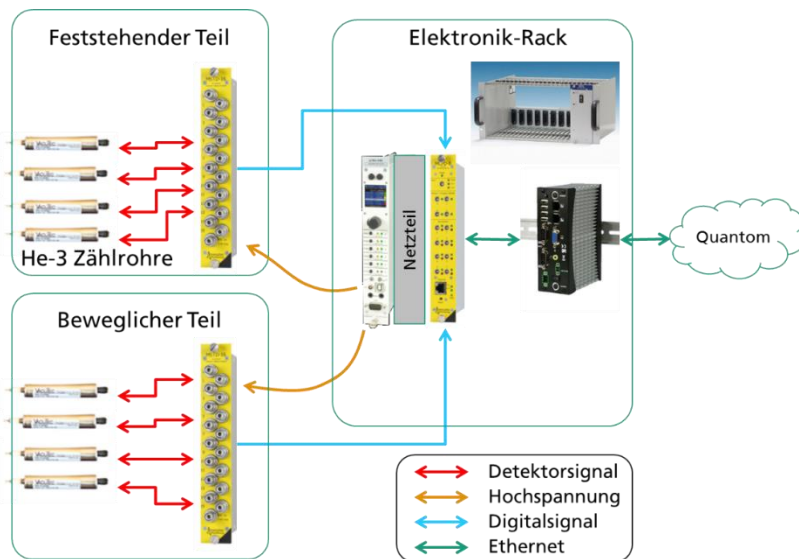


Abbildung 31: Skizze des Messaufbaus für die Online-Neutronenflussmessung.

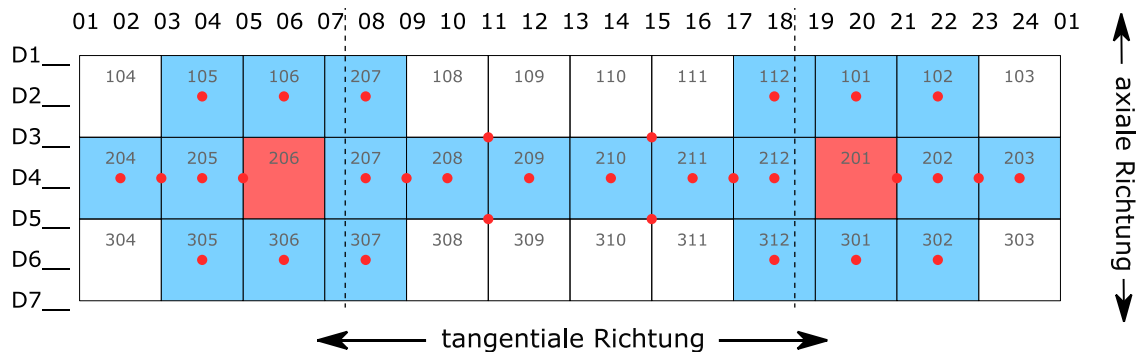


Abbildung 32: Finale Zählrohrpositionen (rote Punkte) zur optimalen Messung des Neutronenflusses. Die roten Felder zeigen die Positionen der HPGe-Detektoren, die blauen Felder sind diejenigen, die noch einen erheblichen Anteil am Gamma-Signal haben.

8.2. ³He-Zählrohre zur Neutronenflussmessung

8.2.1. Kalibrierung der ³He-Zählrohre

Die Zählrohre wurden mithilfe eines speziell dafür im INT angefertigten Moderatorblocks kalibriert [64]. Im Moderatorblock aus Polyethylen (PE) wurden je 16 der 34 Zählrohre gleichzeitig von einer Am/Be-Quelle mit einer Neutronenquellstärke von $6,06 \times 10^5$ n/s bestrahlt, wobei der Quellen-Zählrohr-Abstand auf eine maximale Zählrate hin optimiert war. Durch Messung verschiedener Konfigurationen der Zählrohre im Moderator und Variation der Zuordnung zwischen Zählrohrposition und Auslesekanälen wurden dabei auch zählrohrunabhängige Einflüsse quantifiziert. Dabei wurden sowohl die Zählrohrpositionen variiert als auch die Zuordnung der Kanäle zu den Positionen im Moderator. Für jede Konfiguration von Zählrohren im Moderator wurden die Verstärkereinstellungen optimiert. Es wurde ein Spline an die Form des Pulshöhenspektrums angepasst und die Änderung der

Verstärkerwerte berechnet, um die Spektren aller Zählrohre zu konvergieren. Durch Änderung der Verstärkerwerte und Neuanpassung des Splines wurden iterativ die optimalen Verstärkerwerte bestimmt. Aus den Messungen verschiedener Konfigurationen wurden die relativen Empfindlichkeiten der Zählrohre, die relativen Empfindlichkeiten der Kanäle sowie die relativen Flüsse an den Zählrohrpositionen bestimmt. Die relativen Werte wurden dann über die klassischen Score-Funktion der gewichteten quadratischen Abweichungen durchgeführt. Hierzu wurde die Funktion `CURVE_FIT` aus dem `SCIPY`-Paket für die `PYTHON` Programmiersprache genutzt. Dabei wurde die theoretische Zählrate

$$Z(c, t, m, p) = I_c \cdot \varepsilon_t \cdot \eta_m \cdot \phi_p$$

in Abhängigkeit von den Entwicklungskoeffizienten c, t, m, p als Produkt der mittlerer Zählrate I mit Funktionen von Entwicklungskoeffizienten ε_t (Effizienz des Zählrohrs), η_m (Empfindlichkeit des Kanals) und ϕ_p (Position im Moderator) angenommen. Anhand von simulierten Flüssen und gemessenen Zählraten wurde die Effizienz der Zählrohre berechnet und daraus die in der Anlage zu erwartenden Zählraten geschätzt. Diese deuteten darauf hin, dass entgegen der ursprünglichen Erwartung eine Totzeitkorrektur erforderlich ist.

8.2.2. Kalibrierung der ^3He -Zählrohre - Update

Später wurden zwei weitere Kalibrierungsmessungen mit den Konfigurationen für den statischen und den mobilen Teil von Quantum durchgeführt [65]. Hierbei konnten auch die neuen, für QUANTOM angefertigten HV-Kabel genutzt werden, so dass sich dieser Aufbau nicht von dem finalen für QUANTOM unterscheidet. Drei Punkte sollten hierbei bearbeitet werden:

- Es sollte überprüft werden, ob die zuvor gewonnenen Kalibrierkonstanten in einer späteren Messung reproduziert werden.
- Die Kalibrierkonstanten sollten anhand der zusätzlichen Messungen aktualisiert werden.
- Zuvor war eine unerklärliche zeitliche Variation der Zählrate beobachtet worden. Durch eine genaue Bestimmung des Untergrundes und des zeitlichen Verhaltens während der Bestrahlung sollte ermittelt werden, ob eine Aktivierung des Zählrohrmaterials der Grund der Variation ist.

Das experimentelle Vorgehen entspricht im Wesentlichen dem zuvor beschriebenen. Der Moderator wurde an der gleichen Position innerhalb des Neutronengeneratorraums aufgestellt. Vor der Messung mit der Am/Be-Neutronenquelle wurde für 35 Stunden der Untergrund bestimmt. Die Verstärkereinstellungen wurden hierfür von der vorhergehenden Messung übernommen. Anschließend erfolgten 23 Messungen für die relative Kalibrierung mit Quelle und einer Messzeit von jeweils 1 Stunde, ebenfalls mit den alten Verstärkereinstellungen. Nach einer Kalibration wurden nochmals 3 Spektren aufgenommen. Danach erfolgten für 71 Stunden weitere Untergrundmessungen. Für die Detektorkonfiguration des mobilen Teils stand weniger Messzeit zur Verfügung. Hier konnte nur eine Kalibration erfolgen und anschließend eine Messung über knapp 16 Stunden. Anschließend wurde noch über drei Stunden der Untergrund gemessen. Da der Effekt der zeitlich variablen Zählrate nach diesen Messungen noch nicht verstanden war, wurde der Aufbau in ein zweites Labor überführt, in dem keine Einschränkung der Verfügbarkeit bestand. Hier konnte für 358 Stunden der Untergrund gemessen werden und dabei die Reaktion auf verschiedene Änderungen beobachtet werden. Zur

Zeitabhängigkeit der Zählraten wurden zwei Messreihen durchgeführt. Zum einen wurde vor und nach der Messung der statischen Konfiguration eine ausgedehnte Untergrundmessung durchgeführt. Hier zeigt sich sowohl bei dem Start der Datenaufnahme als auch bei Start und Ende der Bestrahlung ein Anstieg der Zählrate. Hiermit lässt sich ausschließen, dass dieser Anstieg durch eine Aktivierung hervorgerufen wird – wäre eine Aktivierung ursächlich, dürfte die Zählrate nach Beginn der Datenaufnahme nicht steigen und müsste nach dem Ende der Bestrahlung abfallen. Da die Anstiege auch in dem Untergrund sichtbar sind, wurde eine weitere Messreihe ohne Quelle aufgenommen. Diese fand im Labor A044 statt, hier gab es keine Überschneidungen mit weiteren Aktivitäten, wie dies im Neutronengeneratorraum der Fall gewesen sein könnte. Verschiedene Effekte (z. B. Wechsel des Quellenhalters, Änderung des Threshold) wurden untersucht. Die Röhren für den mobilen Teil befanden sich dabei im Moderator, die Röhren für den stationären Teil lagen in der offenen Transportverpackung. Dabei zeigte sich, dass die Zählrate empfindlich auf Bewegung der Kabel reagiert. In der Zählrate zeigte sich jedoch kein anhaltender Effekt bei den folgenden, während der Kalibrierungsmessungen durchgeführten, Aktivitäten:

- Entfernen und Einsetzen des Quellenhalters in den Moderator.
- Stoppen der Messung, Änderung des Diskriminator-Thresholds, kurzer Neustart und dann Rückänderung des Thresholds auf den originalen Wert.
- Stoppen der Messung, Änderung der Verstärkungen aller Kanäle des mobilen Teils und anschließende Rückänderung auf den originalen Wert.
- Ein Herunterfahren und erneutes Einschalten der Hochspannung.
- Ein Bewegen der Kabel.

9. AP9: Aufbau und Inbetriebnahme der stationären Messanlage

9.1. Aufbau und Inbetriebsetzung

Der Aufbau der Messanlage erfolgte modular (siehe Abbildung 33). Insgesamt wurden 16 Modulen durchgeführt um die Messanlage vollständig aufzubauen (siehe Abbildung 34). Die Komponenten der Messanlage wurden zuerst angeliefert und im Vorraum des Technikums zwischengelagert. Die Logistikplanung für Anlieferung und Optimierung des Platzes im Vorraum wurden deutlich unterschätzt. Die Stahlunterstruktur, die lineare Einheit (siehe Abbildung 33) und die Gestelle für die HPGe Detektoren wurden in den Boden fest geankert. Die Beschaffenheit des Bodens wurde untersucht um die passende Ankerschrauben auszuwählen. Für die mobile Anlage, ist es geplant den Kran zusätzlich an dem Container festzuankern. Aufgrund der Gebäudestatik und Materialbeschaffenheit war es nicht möglich, den Kran im Technikum von AiNT an der Decke, der Wand, oder am Boden zu befestigen. Es wurde zusätzliches Engineering durchgeführt, um die Befestigung des Krans an der Messanlage zu realisieren. Es wurden vier massive Stahlverbindungsstücke zwischen Säule und Messanlage entwickelt und gefertigt (siehe Abbildung 35). Diese Stahlverbindungsstücke wurden am Stahlkäfig der Messanlage verschraubt. Hierzu mussten vier Abschirmungsplatten abgebaut werden. Beim Anheben schwerer Fässer wurde der feste Teil der

Messanlage tordiert. Diese Torsion führte zur Kollision beim Zufahren der Messanlage. Zur Behebung wurden einige Abschirmplattengekürzt. Ein zusätzlicher Fuß wurde kurzfristig entwickelt, um die Kraft in den Boden einzuleiten. Im Rahmen von AP01 erfolgt das Engineering, um den Kran am Fuß und Kopf des Sondercontainers zu befestigen und die Torsion der Anlage zu verhindern. Die gesamte Anlage wurde Ende Oktober mit einem nicht radioaktiven Fass erprobt. Erstmals konnte ein Fass mit Neutronen bestrahlt und das entsprechende induzierte Gamma Spektrum aufgenommen werden. Die Kommunikation zwischen den verschiedenen Softwaremodulen wurde erfolgreich getestet. Am 26.10.2020 fand die Abnahme durch den Sachverständigen statt. Die Messanlage wurde mängelfrei abgenommen.





Abbildung 33: Modulare Aufbau der Messanlage Quantum.



Abbildung 34: Übersicht der stationären Messanlage QUANTOM im geöffneten Zustand (links) und geschlossenen Zustand (rechts)

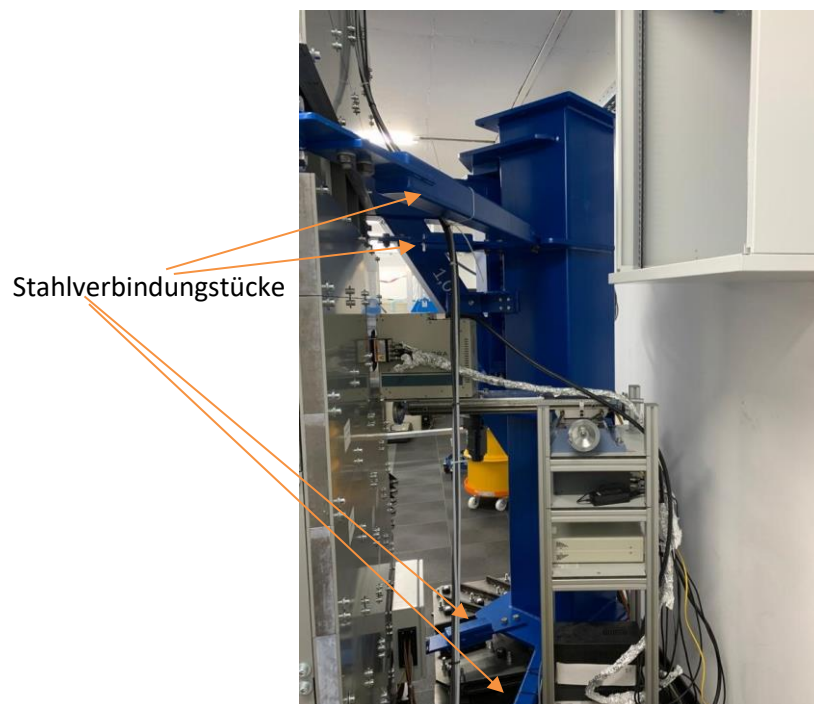


Abbildung 35: Vier massive Stahlverbindungstücke für den Kran.

Der Kontrollraum wurde in dem Vorraum aufgestellt. Die Kommunikation zwischen der Anlage im Strahlenschutzbauwerk und den Kontrollraum wurde anhand Netzkabel erstellt. Der Kontrollraum besteht momentan aus vier Einheiten (siehe Abbildung 36):

- Einheit 1: Steuerung der Messanlage
- Einheit 2: Software AINT und Datenbank
- Einheit 3: Steuerung des Neutronen Generators
- Einheit 4: Ablesen der Neutronen Detektoren



Abbildung 36: Kontrollraum der Messanlage QUANTOM.

9.2. Inbetriebnahme und Kalibrierung des Neutronengenerators

Der für das Projekt QUANTOM erworbene Neutronengenerator (Model - DD109.4) wurde im Oktober 2019 an das Technikum von AiNT angeliefert und mit Hilfe von Mitarbeitern des Herstellers in Betrieb genommen. Um zu überprüfen, welche Quellstärke unter bestimmten Parametereinstellungen zu erwarten ist und ob der Generator dauerhaft stabil läuft bzw. mit gleichbleibenden Einstellungen dieselbe Quellstärke reproduziert, wurden Messungen mit dem Generator im Strahlenschutzbauwerk von AiNT durchgeführt. Der Messaufbau wird in Abbildung 37 dargestellt. Während der Messung wurde der Neutronengenerator hinter der QUANTOM-Anlage betrieben. Eine Neutronensonde wurde in einem Abstand von 1 m zur Target-Position neben dem Generator platziert. Die Aktivierungsfolien wurden auf eine dünne Plastikplatte gelegt, in einem Abstand von 13,5 cm zum Generator bzw. 21 cm zur Target-Position. Mit der Neutronensonde wird die Neutronen-Ortdosisleistung (ODL) gemessen, welche direkt von der Quellstärke abhängt. Mit den ODL-Messungen kann das relative Verhältnis der Quellstärke in Abhängigkeit von unterschiedlichen Parametereinstellungen hergeleitet werden. Allerdings liefert die ODL-Messung keine Aussage zur absoluten Quellstärke. Um den absoluten Wert der Quellstärke zu bestimmen, wurden zusätzlich Messungen mit Aktivierungsfolien aus Titan (Ti), Indium (In) und Nickel (Ni) durchgeführt.

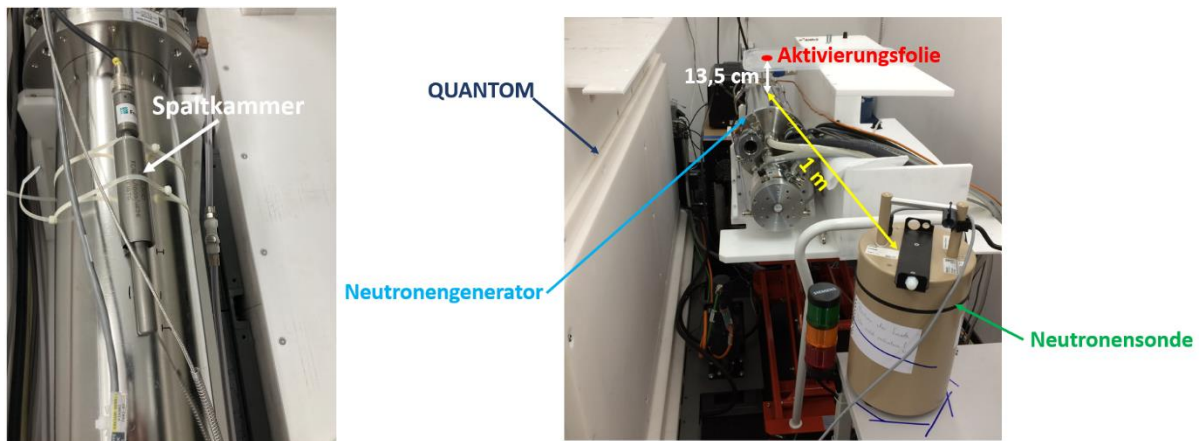


Abbildung 37: Messaufbau für die Kalibrierung des Neutronengenerators mit Neutronensonde und Aktivierungsfolie

Die Messdaten aus ODL bzw. Folienaktivierung wurden ausgewertet. Die Ergebnisse zeigten, dass die maximale Quellstärke des Neutronengenerators von ca. $1,5 \times 10^9$ n/s weit entfernt von der avisierten Quellstärke von 4×10^9 n/s liegt. Da die absolute Quellstärke des Neutronengenerators ein entscheidendes Parameter für die quantitative Analyse von Abfallmatrizen ist, ist es notwendig, die Quellstärke mittels geeigneter Messtechnik in Echtzeit zu bestimmen. Aus diesem Grund hat der Projektpartner FINT eine Spaltkammer als Leihgabe sowie vorübergehende Lösung zur Verfügung gestellt. Die Spaltkammer aus dem Hersteller Centronics ist mit U_3O_8 beschichtet, wobei ^{238}U als Aktivmaterial nur gegenüber schnellen Neutronen ($E_n \geq 1$ MeV) empfindlich ist. Für die genaue Bestimmung der Quellstärke muss die eingesetzte Spaltkammer zuerst im Neutronenfeld des Einsatzorts zuerst kalibriert werden. Prinzipiell kann die Kalibrierung der Spaltkammer anhand der Neutronenfolienaktivierung durchgeführt werden. Das Konzept zur Kalibrierung der Spaltkammer wird in Abbildung 38 dargestellt. Um die Ergebnisse aus Spaltkammermessung sowie Folienaktivierung zusammen zu schließen ist die Simulation der Neutronentransport in der QUANTOM-Anlage notwendig. Da die eingebauten 32 He-3 Zählrohre den thermischen Neutronenfluss auch messen, kann die Quellstärke theoretisch anhand den Messdaten sowie Simulation von He-3 unabhängig von Folienaktivierung bestimmen lassen.

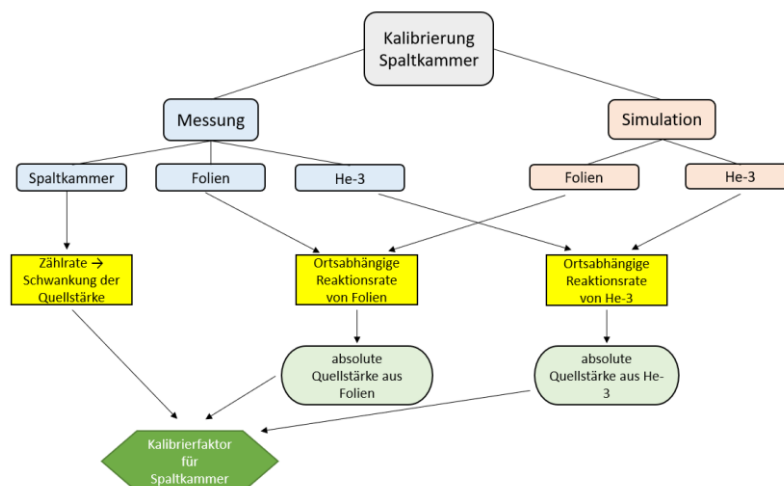


Abbildung 38: Konzept zur Kalibrierung der Spaltkammer anhand Neutronenfolienaktivierung

Der Messaufbau der Neutronenfolienaktivierung wird in Abbildung 39 vorgestellt. Die Spaltkammer wurde direkt neben der Target-Position des NGs eingesetzt. Ein leeres Fass wurde in die Messkammer gebracht. Die Aktivierungsfolie wurde in 6 Messpositionen hintereinander eingesetzt, wobei die Aktivierungsfolie bei S00, S05, S10 und M08 parallel zum aktiven Volumen des He-3 Detektors ist. Anhand Neutronenfolienaktivierung sowie He-3 Messung wurde die Quellstärke des Neutronengenerators jeweiliger Messung ausgewertet. Korreliert die Quellstärke mit der Zählrate der Spaltkammer wurde eine Kalibrierkonstante von $4,99\text{E}+06$ für die Spaltkammer bestimmt [55].

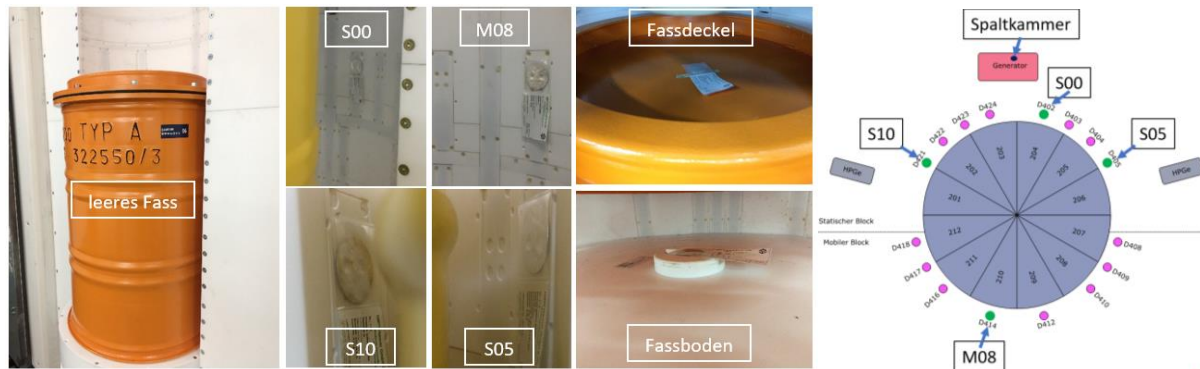


Abbildung 39: Messaufbau der Neutronenfolienaktivierung. Ein leeres Fass ist auf der Messposition gebracht. Die Aktivierungsfolie aus Indium wird an 6 Positionen eingesetzt, jeweils an Position S00, M08, S05, S10, Fassettenboden sowie Fassettenboden.

9.3. Kalibrierung und Validierung der HPGe-Detektoren

Für das QUANTOM-Projekt wurden zwei elektrisch gekühlten HPGe-Detektoren (Serien-Nr.: B20501 & B20502) mit einer relativen Effizienz von 60 % vom Hersteller Mirion Technologies (CANBERRA) GmbH erworben. Die beiden Detektoren wurden Ende März 2019 ans Technikum von AiNT geliefert. Nach der Annahme wurden die beiden Detektoren mit den Kryostaten und Lynx-MCA verbunden und bis auf die Betriebstemperatur von -190°C abgekühlt.

Für das gamma-spektrometrische Messverfahren spielt die Energie- und Effizienzkalibrierung des Detektors eine entscheidende Rolle, weil die berechnete Photopeak-Effizienz unmittelbar vom Detektormodell abhängt. Daher wurden die Detektormodelle beider Detektoren anhand von Kalibrierungsmessungen und physikalischen Simulationsstudien hergeleitet und validiert, bevor die beiden Detektoren in die Messanlage eingesetzt werden können. Um die tatsächlichen energieabhängigen Photopeak-Effizienzen eines Detektors zu bestimmen werden Messungen mit Kalibrierquellen auf einer Kalibriervorrichtung, die auf einem Tisch montiert wird, durchgeführt. Der experimentelle Aufbau zur Durchführung der Kalibrierungsmessungen ist in Abbildung 40 dargestellt. Während der Messungen wurde eine Eu-152 Kalibrierquelle auf dem Tisch mit unterschiedlichen Abständen zum Detektor positioniert. Die experimentelle Photopeak-Effizienzen wurden mittels Analysesoftware Genie2000™ ausgewertet. Anhand physikalischen Simulationen wurden die Photopeak-Effizienzen unter der Benutzung von Monte Carlo Methoden bestimmt, wobei der von AiNT eigenentwickelte Berechnungscode TRACER (Tracing Efficiency Reconstruction) verwendet wurde [54]. Die Photopeak-Effizienz eines HPGe-Detektors wird im Wesentlichen von den folgenden Geometrieparametern beeinflusst:

- Dimension des Germanium-Kristalls (Radius r_D , Länge L_D)
- Stärke der Kristalltotschicht (d_T)
- Stärke der Aluminium-Kappe (d_A)
- Innerer Abstand zwischen Germanium-Kristall und Aluminium-Kappe (a_K)

Bei der Simulationsstudie wurden die Geometrieparameter des Detektors optimiert, damit eine Übereinstimmung (rel. Abweichung < 3 %) zwischen Messung und Simulation erreicht wird. Allerdings liegt das Ziel der Validierung nicht daran, das tatsächliche Detektormodell eins zu eins zu rekonstruieren, sondern ein Messwert repräsentiertes Detektormodell zu bestimmen. Der Algorithmus für die Parameteranpassung wird verwendet, dass der χ^2/dof (Degrees of freedom) -Wert durch simultane Optimierung der drei Parameter r_D , d_T und a_K minimiert wird und dadurch das Detektormodell iterativ verbessert wird. Der χ^2 wird definiert als:

$$\chi^2 = \sum_i^n \left(\frac{\varepsilon_{M i} - \varepsilon_{S i}}{\sigma_i} \right)^2$$

wobei ε_M die durch Messung bestimmte Effizienz, ε_S die simulierte Effizienz und σ die Standardabweichung ist für alle n Messungen. Durch die Parameteroptimierung wird eine gute Übereinstimmung zwischen experimenteller und simulierter Photopeak-Effizienz beider Detektoren erreicht, dass die relative Abweichung von Photopeak-Effizienz für jede Messposition kleiner als 2 % liegt. Dadurch wurde das Modell beider HPGe-Detektoren validiert. Als nächsten Schritt werden die geometrische Parameter der Anlage überprüft, indem das validierte Detektormodell ins Anlagemodell integriert, und das Validierungsprozess mittels Kalibrierquelle wiederholt wird. Im September 2020 wurden beide HPGe-Detektoren in die QUANTOM-Messanlage eingebaut. Bei der Validierung wurden folgende Parameter angepasst (Anlagemodell siehe Abbildung 41):

- a) Abstand zwischen Detektor-Endkappe und Li-Platte
- b) Aussparung des Pb-Kollimators
- c) Abstand zwischen Li-Platte und PTFE-Trichter
- d) Verschiebung der Mittelachse zwischen HPGe und PTFE-Trichter

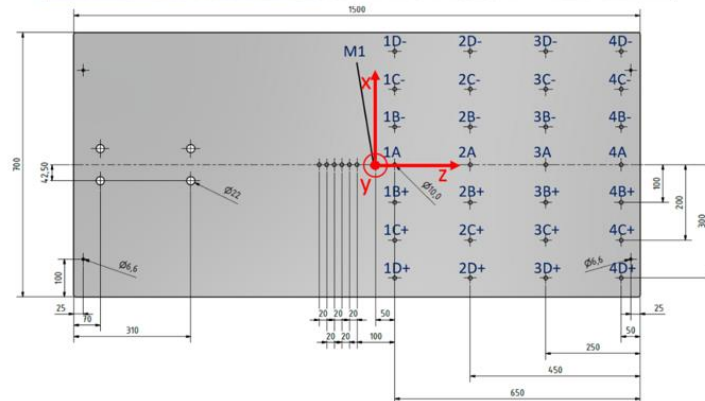
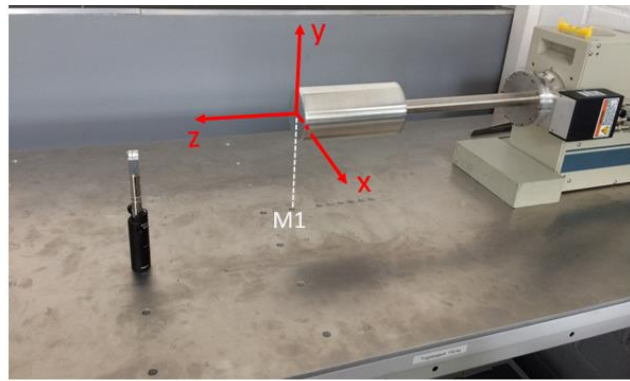


Abbildung 40: Foto und Skizze des experimentellen Aufbaus zur Durchführung der Kalibrierungsmessungen.

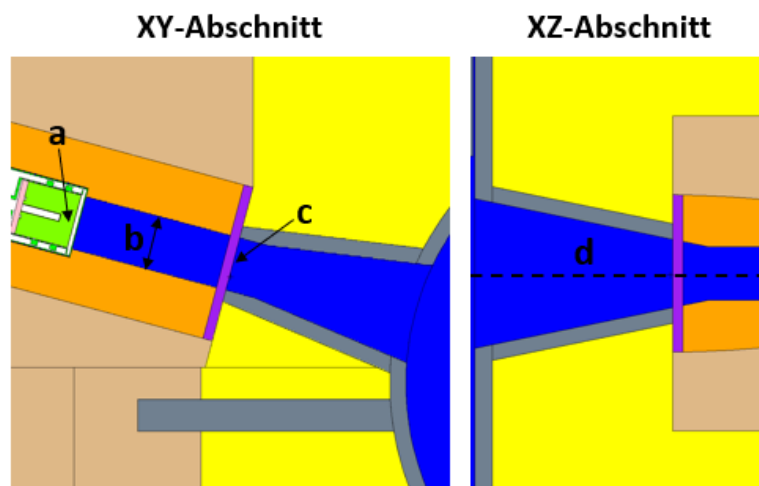


Abbildung 41: Skizze des Anlagemodells in XY- bzw. XZ-Abschnitt in der Umgebung des HPGe-Detektors.

Für jeden HPGe-Detektor wurden Effizienzmessungen an 6 Messpositionen mit einer Eu-152 Kalibrierquelle durchgeführt (Messaufbau siehe Abbildung 42):

- P0 – mittig auf der Li-Platte
- P1-P4 – auf den 4 Ecken der PTFE-Trichter
- P5 – mittig auf der Fassposition

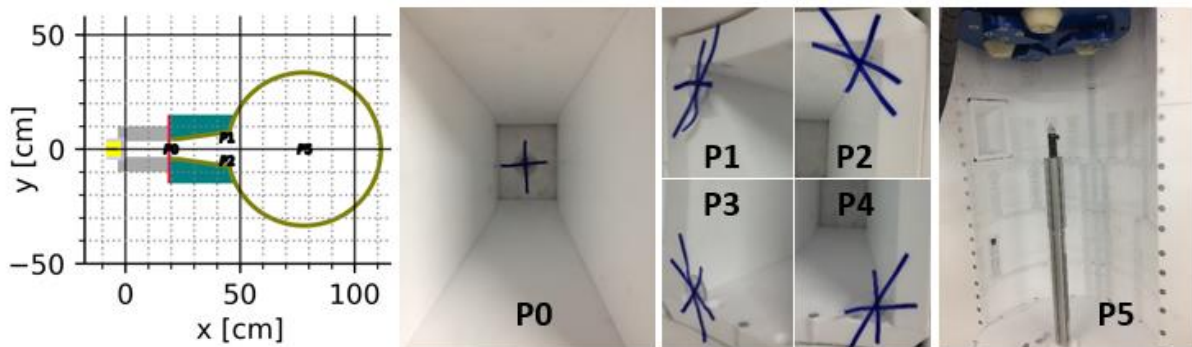


Abbildung 42: Messpositionen P1-P5 für die Validierungsmessungen.

In der Simulationsstudie wurden die geometrischen Parameter des Anlagemodells **a) – d)** angepasst, so dass die experimentell bestimmte Photopeak-Effizienz aller Messpositionen mit relativen Abweichungen generell kleiner als 5 % reproduziert werden. Dadurch wird die Validierung des Detektor- bzw. Anlagemodells erfolgreich abgeschlossen.

10. AP10: Experimentelle Validierung mit verschiedenen Matrices

Zur Erprobung und Validierung der Messtechnik wurden diese Referenzfässer gefüllt mit verschiedenen Referenzmaterialien (z. B. Zirkonsand, Melamin, Stuckgips, Asilikos etc.) gemessen und ausgewertet. Die Referenzmaterialien wurden als Funktion ihrer Neutronenaffinität und Gammaabsorptionseigenschaften ausgewählt. Die Vielfältigkeit der ausgewählten Fasstypen (diverse Rollsicken- und Rollreifenfässer sowie ein Spannringfass) und die verschiedenen Fassdeckeltypen (Doppelhutdeckel, D-Deckel, H-Deckel, Pilzdeckel, Winkelringdeckel etc.) validieren die Einsetzbarkeit der Messanlage für die reale Vielfältigkeit der eingesetzten Abfallfässer. Für die Handhabung aller 200-l-Fasstypen mit verschiedenen Fassdeckeln wurde ein universeller Adapter entwickelt und hergestellt (siehe Abbildung 4). Dieser Winkelringadapter wurde erfolgreich getestet und eingesetzt, so dass alle Fasstypen mit verschiedenen Deckeln auch ohne Deckeltausch sicher gehandhabt werden können. Proben der in der Validierungskampagne eingesetzten Referenzmaterialien wurden an dem Forschungsreaktor in Budapest anhand der P&DGNA und standardisierter Prozesse analysiert [14] (Neutronenquellstärke = $1 \cdot 10^{15}$ n/s). Diese Ergebnisse sind mit den Ergebnissen aus der QUANTOM® Messanlage für 5 Referenzmaterialien (Asilikos, Ilmenit, Melamin, Stuckgips, und Zirkonsand) verglichen worden und in 10.1.4 dargestellt.

Für jedes Element wurden ein oder mehrere Peaks im Spektrum ausgewertet, um orts aufgelöste Massen zu berechnen. Die Auswertung der Fassmessungen beinhaltet einen datengetriebenen Ansatz zur Kalibrierung der Spaltkammer zur Bestimmung der Quellenstärke des Neutronengenerators. Messunsicherheiten wurden mittels Monte-Carlo-Sampling bezüglich aller Eingangsgrößen des Rekonstruktionsverfahrens berechnet. Zu den betrachteten Unsicherheitsquellen gehören unter anderem Kalibrierungsunsicherheiten, Modellunsicherheiten in den Simulationen und Unsicherheiten bezüglich der Positionierung des Fasses innerhalb der Messkammer. Außerdem müssen einige Gammalinien bzgl. des aktiven Untergrundsignals der Messung (z. B. H, Al aus der Messanlage) korrigiert werden. Daraus resultiert teilweise eine deutlich erhöhte Messunsicherheit für die entsprechende Elementmasse.

Die integrale Messung eines Fasses dauert ca. 2 h bis 4 h. Die erreichte Sensitivität (Nachweisgrenze) ist elementabhängig. Eine Sensitivitätsstudie wurde anhand von MCNP Simulationen [39] (homogene Betonmatrix mit einer Dichte von 2,0 g/cm³ und mit einer Messzeit von 4 Stunden) durchgeführt. Für Metalle wie Al, Cr, Fe, Cu, Ni, Mn, Mo etc. kann eine Nachweisgrenze von ca. 100-1000 ppm erreicht werden. Für andere toxische Elemente wie B oder Hg kann für eine Messzeit von 4 h eine noch niedrigere Nachweisgrenze von ca. 1-10 ppm erreicht werden. Diese Nachweisgrenzen sind von der Messzeit abhängig und können durch längere Messzeiten weiter reduziert werden.

10.1. Validierungskampagne mit homogenen Referenzfässern

Im Rahmen der Validierungskampagne wurden fünf Fässer mit jeweils einem homogenen Referenzmaterial vollgefüllt. Die gemessenen Materialien werden im Folgenden aufgeführt: **Melamin** (C₃H₆N₆), **Stuckgips** (CaSO₄·1/2H₂O), **Zirkonsand** (ZrO₂+SiO₂), **Ilmenit** (TiO₂+SiO₂), **Asilikos** (SiO₂+CaO). Die Auswahl der Materialien wurde aufgrund der verschiedenen Neutronen- und Gammaabsorptionsfähigkeiten getroffen. Weiterhin wurden unterschiedliche Fasstypen verwendet. Zu jedem verwendeten Fass existiert ein zweites Fass, das für eine Leermessung ebenfalls in der QUANTOM Messanlage gemessen wurde. Mit diesen Messdaten wurde im Rahmen der Auswertung eine Untergrundkorrektur der Daten vorgenommen. Die Messzeit betrug dabei für jede der Messungen 15 Minuten Real-Time pro Messposition, was einer Gesamtmesszeit von 6 h je Fass entspricht. Die Live-Time je Messung variiert je nach aufgetretener Totzeit zwischen 600 und 720 s. Inklusive des Zeitbedarfs zum Fasswechsel, Vorbereitung der Messung und dem Hochfahren des Neutronengenerators (2 h) konnte somit ein Fass an jeweils einem Tag gemessen werden.

10.1.1. Simulation und Berechnung der Messparameter

Für eine Massenrekonstruktion neben den ausgewerteten Spektren (Netto-Photopeak-Zählraten P_R^i) müssen die folgenden Parameter für jede einzelne Messposition bestimmt werden:

- Photopeak-Effizienzen ε für jede einzelne Partition (Gamma-energieabhängig)
- Neutronenspektren für jede einzelne Partition (Neutronen-energieabhängig)
- Partielle Wirkungsquerschnitte für jede einzelne Partition (Gamma-Linien spezifisch)
- Totaler Neutronenfluss für jede einzelne Partition

Die Photopeak-Effizienzen wurden standardmäßig mit TRACER für ein festes Set von Energiestützstellen bestimmt. Die entsprechenden Werte für die einzelnen Gamma-Linien wurden dann mittels Interpolation zwischen den benachbarten Stützstellen bestimmt. Für die Neutronenspektren wurde in einem ersten Durchlauf der Auswertung MCNP genutzt. In einem zweiten Schritt wurden die Neutronenspektren auch mit SPARC berechnet und die erhaltenen Ergebnisse verglichen. Die partiellen Wirkungsquerschnitte können durch die PEAK Software berechnet werden, indem die vorab simulierten Neutronenspektren eingelesen werden.

10.1.2. Spektren-Auswertung und Untergrundkorrekturverfahren

Im Rahmen der Validierungskampagne mit homogenen Referenzmaterialien wurde auch das Verfahren zur automatischen Spektrenauswertung weiterentwickelt und erprobt. Die automatisierte

Spektrenauswertung inklusive des Verfahrens zur automatischen Peak-Zuordnung wird in Abschnitt 5.5 beschrieben. Die Spektren wurden jeweils automatisch ausgewertet und nachträglich einer QS durch zwei in der Gamma-Spektrometrie erfahrenen Mitarbeiter unterzogen. Die Ergebnisse dieser QS sind in die Weiterentwicklung des Verfahrens eingeflossen. Die Auswertung beruht auf den final geprüften und korrigierten Spektrenauswertungen, die im Rahmen der QS erstellt wurden. Durch den Betrieb des Neutronengenerators werden nicht nur das Fass und dessen Inhalt, sondern auch sämtliche Anlagenteile aktiviert. Dadurch ergibt sich auch ein Gamma-Signal aus den Anlagenkomponenten. Durch die Kollimation der HPGe-Detektoren wird dieser Untergrundanteil des Messsignals minimiert, er ist aber nicht für alle Gamma-Linien vernachlässigbar. Daher ist für einige Gamma-Linien eine Trennung von Signal aus der Messanlage und dem Signal der Fassmatrix zur Bestimmung des Netto- oder Nutzsignals für die Auswertung notwendig. Ein solches Untergrundkorrekturverfahren wurde im Rahmen dieser Messkampagne aus den Messdaten hergeleitet. Zur Bestimmung einer Untergrundzählrate wurden zusätzlich zu den gefüllten Fässern auch leere Fässer desselben Fasstyps gemessen. In den Spektren wird an allen in der Auswertung der Referenzmaterialien relevanten Energien ein Peak gesucht und die Untergrundzählrate P_R^U bestimmt, falls ein Peak identifiziert werden konnte. Aufgrund der Rotationssymmetrie wurden pro Höhenposition zwei Spektren aufgenommen und ausgewertet, je eins pro HPGe-Detektor. Die Bestimmung der untergrundkorrigierten Nettopeak-Zählrate P_R geschieht dann durch Korrektur der gemessenen Zählrate \hat{P}_R im Spektrum (nach Abzug des Compton-Untergrundes, dies geschieht bereits bei der Spektrenauswertung): $P_R = \hat{P}_R - \alpha \cdot P_R^U$. Der Faktor α wird beeinflusst von der variierenden Abschirmwirkung der Matrix.

Im Rahmen der Validierungskampagne werden für die relevanten Gamma-Linien die Untergrundkorrekturfaktoren sowie das entsprechende Unsicherheitsband berechnet. Diese Werte werden auch in den folgenden Messkampagnen zur Untergrundkorrektur genutzt. Für den Fall, dass eine Linie im aktiven Untergrund, aber nicht in einem der Referenzfässer auftaucht, wird die Untergrundkorrektur komplett modelliert als $\alpha = 1$ mit Unsicherheitsband $\alpha \in [0.25, 1.5]$.

10.1.3. Unsicherheitsanalyse des Auswerteverfahrens

Bei der Massenrekonstruktion müssen die Einzelunsicherheiten aller eingehenden Parameter berücksichtigt werden, um im Rahmen eines Monte-Carlo Samplings die entsprechenden Messunsicherheiten auf allen Elementmassen zu bestimmen. Dabei werden die Unsicherheiten durch unterschiedliche Effekte beeinflusst, die teilweise stark zueinander korreliert sind. Grob lassen sich die Ursachen dieser Unsicherheiten folgendermaßen klassifizieren:

- Statistik der Messung (Zählraten, Untergrundzählraten)
- Modellunsicherheiten (Detektormodellierung, Fassmodell, totaler Neutronenfluss)
- Technisch bedingte Unsicherheiten (Positionierung des Fasses, Asymmetrie der Detektoren)

Im Rahmen des Samplings der Massenrekonstruktion werden daher unterschiedliche Unsicherheitsbeiträge für die Einzelunsicherheiten berücksichtigt. Die einzelnen Unsicherheitsbeiträge werden entweder im Rahmen der Neutronentransportsimulation, Gammatransportsimulation oder Spektrenauswertung in der Auswertung berücksichtigt. Diese Unsicherheitsbeiträge sind in der folgenden Tabelle 5 aufgeführt. Weiterhin ist in der Tabelle aufgeführt, ob der jeweilige Unsicherheitsbeitrag unabhängig von den anderen Sektoren oder Messpositionen eingeht oder ob

Korrelationen zwischen den Parametern der einzelnen Sektoren oder Messdaten der zwei Detektoren berücksichtigt wurden.

Typ	Unsicherheitsbeitrag	Unabhängiger Unsicherheits-beitrag je Messung/Sektor	Korrelation zwischen Sektoren/ Detektoren	Bestimmt durch
Neutronik	Rel. Kalibrierkonstante	10% Normalverteilt	-	Exp.
	Referenzmassen/ repräsentative Probenahme	-	10% systematisch	Ann.
	Zählrate aus kalibrierter Spaltkammer	1% Normalverteilt	-	Exp.
	Tot. Neutronenfluss im Sektor	5% Normalverteilt	5% systematisch + 6% Verschiebung	Sim.
	Partielle Wirkungsquerschnitte	3% Normalverteilt	5% systematisch	Sim.
	Quellstärke aktive Untergrundmessung	1% Normalverteilt	-	Exp.
Gamma-Transport	Photopeak-Effizienzen	5% Normalverteilt	3% systematisch aus Asymmetrie Detektoren	Exp. + Sim.
Spektrum	Nettopeak-Zählraten	Poisson + Untergrund + 5% Normalverteilt	2% systematisch aus Asymmetrie Detektoren	Exp.
	Untergrundkorrekturfaktor	Linienpezifisch, Rechtecksverteilung	-	Exp.
	Nettopeak-Zählraten Untergrundkorrektur	Poisson + Untergrund + 5% Normalverteilt	2% systematisch aus Asymmetrie Detektoren	Exp.

Tabelle 5: Unsicherheitsbeiträge, die bei der Berechnung der Messunsicherheit durch Monte-Carlo Sampling der Massenrekonstruktion berücksichtigt werden (Exp. = experimentell, Sim. = simulativ, Ann. = Annahme).

Für die Massenrekonstruktion wurden gemäß der oben aufgeführten Unsicherheiten 1.000-10.000 Monte-Carlo Samples gebildet und jeweils Massenrekonstruktionen mit den gestörten Parametern durchgeführt. Auf Grundlage der berechneten Ergebnisse werden obere und untere Grenzen des 95%-Überdeckungsintervalls angegeben. Aus der Verteilung können auch (relative) Standardunsicherheiten aus den resultierenden Standardverteilungen berechnet werden, allerdings sind diese Werte aufgrund der Asymmetrie der Verteilungsfunktionen oft nur eingeschränkt aussagekräftig. Abbildung 43 zeigt ein beispielhaftes Ergebnis einer Massenrekonstruktion auf Grundlage einer Gamma-Linie von Eisen bei 352 keV.

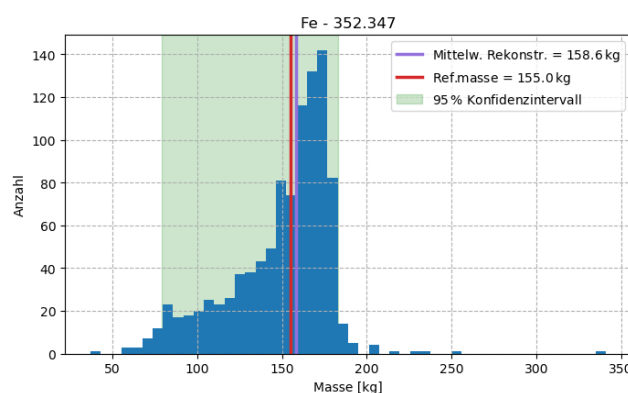


Abbildung 43: Resultierendes Histogramm für die Massenrekonstruktion von Eisen im Ilmenit-Referenzfass mittels der Gamma-Linie bei 352 keV auf Grundlage von 1.000 Monte-Carlo Samples.

10.1.4. Massenrekonstruktion der fünf Referenzmaterialien

Im Rahmen der Messkampagne mit den homogenen Referenzfässern wurde sowohl das Messverfahren als auch die Methode der Auswertung validiert. Die Berechnung der Parameter für die Massenrekonstruktion wird anhand dem im Abschnitt 5.6 dargestellten Verfahren durchgeführt. In den folgenden Abschnitten sind die Ergebnisse der Massenrekonstruktion für die einzelnen Kombinationen der Auswertemethoden dargestellt. Die Ergebnisse werden jeweils in einem Plot für alle fünf Referenzmaterialien dargestellt. Alle rekonstruierten Elementmassen werden dabei auf die bekannte Referenzmasse normiert. Das Verfahren wird somit als validiert angesehen, falls die Referenzmasse jeweils im Rahmen der Messunsicherheit (95%-Überdeckungsintervall) rekonstruiert wurden.

10.1.5. Ergebnisse der Massenrekonstruktion bei Verwendung von MCNP zur Simulation des Neutronenflusses

Für die im Folgenden dargestellten Ergebnisse wurden die Neutronenspektren mit MCNP simuliert und mit der PEAK Software daraus entsprechende partielle Wirkungsquerschnitte berechnet. Der totale Neutronenfluss wurde in allen Partitionen über Skalierung der Neutronenspektren mittels des Ergebnisses der Spaltkammer und eines Rekalibrier-Faktors berechnet. Für jede ausgewertete Gamma-Linie wurde eine Massenrekonstruktion mit 1000-10.000-fachem Monte-Carlo Sampling durchgeführt. Die Ergebnisse der Massenrekonstruktion sind in Abbildung 44 für alle Referenzmaterialien normiert auf die bekannte Elementmasse dargestellt. Zunächst ist festzustellen, dass alle Massen im Rahmen der Unsicherheiten rekonstruiert werden konnten und damit die Validierung des Mess- und Auswerteverfahrens erfolgreich war. Die durchschnittliche absolute Abweichung zwischen der bekannten Masse und den Erwartungswerten der MC-Massenrekonstruktion beträgt $\overline{\Delta_{abs}} = 6.1\%$. Die relative Messunsicherheit variiert stark je nach Material und Gamma-Linie.

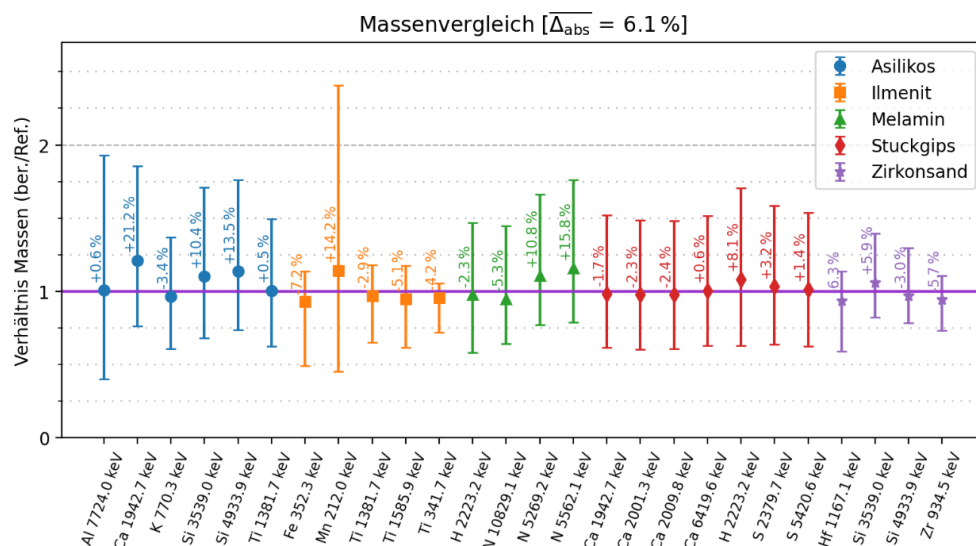


Abbildung 44: Ergebnisse der Massenrekonstruktion für die fünf Referenzmaterialien bei manueller Spektrenauswertung und Neutronentransportsimulation mittels MCNP, jeweils normiert auf die bekannte Referenzmasse.

10.1.6. Ergebnisse der Massenrekonstruktion bei Verwendung von SPARC zur Simulation des Neutronenflusses

Für das Projekt QUANTOM wurde ein spezieller Neutronentransportcode SPARC [41] entwickelt, der eine Diffusionsapproximation der linearen Boltzmann-Gleichung mittels finiter Elemente Methode löst. Dieser Code bietet Vorteile durch eine reduzierte Laufzeit im Vergleich zu Monte-Carlo Verfahren wie MCNP, es müssen aber Abstriche bei der Genauigkeit der Simulation gemacht werden. Im Rahmen dieser Messkampagne wurde getestet, ob dieser deterministische Neutronentransportcode geeignet ist, in Zukunft die Simulation mit MCNP zu ersetzen und damit die Rechenzeit der Auswertung deutlich zu reduzieren. In der folgenden Auswertung wurde die Berechnung der partiellen Wirkungsquerschnitte sowie des totalen Neutronenflusses mit MCNP entsprechend durch SPARC ersetzt. Die Spektren wurden automatisch ausgewertet. Für jede ausgewertete Gamma-Linie wurde eine Massenrekonstruktion mit 1000-10.000-fachem Monte-Carlo Sampling durchgeführt. Die Ergebnisse der Massenrekonstruktion sind in Abbildung 45 für alle Referenzmaterialien normiert auf die bekannte Elementmasse dargestellt. Die durchschnittliche absolute Abweichung zwischen der bekannten Masse und den Erwartungswerten der MC-Massenrekonstruktion liegt bei $\overline{\Delta_{abs}} = 11.3\%$. Die relative Messunsicherheit variiert auch hier stark je nach Material und Gamma-Linie. Aufgrund der verhältnismäßig geringen Abweichung im Vergleich zu den MCNP Simulationen und den deutlichen Rechenzeitvorteilen ist dieses Vorgehen geeignet im weiteren Verlauf des Projektes als Standardvorgehen verwendet zu werden.

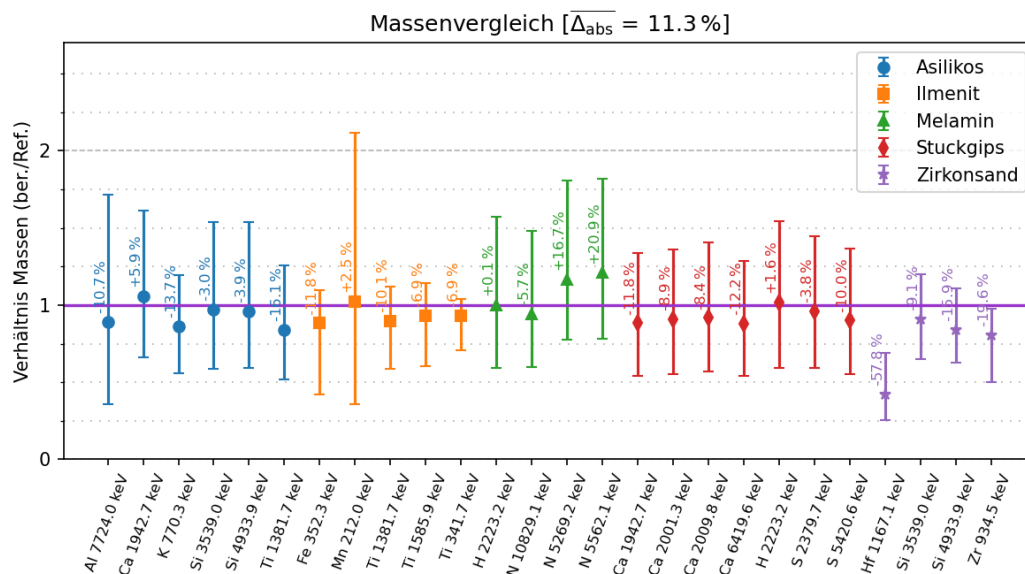


Abbildung 45: Ergebnisse der Massenrekonstruktion für die fünf Referenzmaterialien bei automatischer Spektrenauswertung und Neutronentransportsimulation mittels SPARC sowie Skalierung des totalen Neutronenflusses mittels SPARC und OpenMC, jeweils normiert auf die bekannte Referenzmasse.

Die Ergebnisse dieser Messkampagne mit fünf homogenen Referenzmaterialien bekannter Zusammensetzung zeigen die erfolgreiche Validierung dieses Verfahrens. Als optimales Verfahren im Hinblick auf Rechenzeit der Auswertung und Genauigkeit der Ergebnisse hat sich eine Kombination aus Neutronentransportsimulation mittels SPARC, Skalierung des totalen Neutronenflusses durch zusätzliche OpenMC Simulation und eine automatische Spektrenauswertung herausgestellt. Mit dem hier validierten Verfahren und den in diesem Rahmen festgelegten Parametern kann nun die

Auswertung der inhomogenen Referenzfässer sowie der inhomogenen radioaktiven Abfallfässer erfolgen.

10.2. Validierungskampagne mit inhomogenen Referenzfässern

10.2.1. Massenrekonstruktion der unvollständig befüllten Referenzfässer

Zwei Referenzfässer sind unvollständig mit Referenzmaterialien befüllt: **Edelkorund** (Al_2O_3 ; Füllstand 43 %), **Kieserit** ($\text{MgSO}_4+\text{K}_2\text{SO}_4$; Füllstand 89 %). Die Massenrekonstruktion wird mittels IMR durchgeführt. Bei Edelkorund handelt es sich lediglich um Al_2O_3 und auch nur Signale von Al werden identifiziert. Die Ergebnisse werden in Tabelle 6 dargestellt. Die Ergebnisse stimmen mit der Referenzmessung von Budapest sehr gut überein.

Element	Referenz - Budapest			IMR		
	Masse [kg]	Relative Unsicherheit	Nachweisgrenze [kg]	Masse [kg]	Relative Unsicherheit	Nachweisgrenze [kg]
Al	87,2	0,8%	1,41	87,33	20,1%	0,96
O*	98,3	-	-	98,18	-	-
Total	185,5			185,51		

Tabelle 6: Massenrekonstruktion mit IMR für Edelkorund. Für die Berechnung wurden 500 Monte-Carlo-Sampling verwendet. *Die Masse von O wurde berechnet, dass die Oxidation auf Al angewendet wurde. Die Referenzwerte wurden dem Budapester Reaktor entnommen.

Bei der Massenrekonstruktion wurden 2 Gammalinien von Al verwendet, nämlich die 3033 keV-Linie und die 7724 keV-Linie. Die Nachweisgrenzen wurden für die beiden Gammalinien berechnet. Der kleinste Wert davon wird für das Element Al genommen. Bei Kieserit werden Signale von Mg, S, Cl sowie K nachgewiesen. Die Ergebnisse der Massenrekonstruktion werden in Tabelle 7 dargestellt. Es gibt Abweichungen zwischen der Referenzmessung mit QUANTOM bei einigen Elementen. Aber die gesamte Masse stimmt mit dem Referenzwert überein.

Element	Referenz - Budapest			IMR		
	Masse [kg]	Relative Unsicherheit	Nachweisgrenze [kg]	Masse [kg]	Relative Unsicherheit	Nachweisgrenze [kg]
Mg	29,13	4%	0,73	35,6	31%	7,8
S	38,1	1,6%	0,73	45,53	18%	1,31
Cl	3,21	1,4%	0,009	5,14	15%	0,034
K	2,3	1,7%	0,04	3,5	25%	0,21
H	3,42	0,9%	0,03	-	-	-
B	0,00022	0,02%	3,7e-6	-	-	-
Na	2,43	4,0%	0,11	-	-	-
O*	103,8	-	-	92,3	-	-
Total	182,4			182,1		

Tabelle 7: Massenrekonstruktion mit IMR für Kieserit. Für die Berechnung wurden 500 Monte-Carlo-Sampling verwendet. *Die Masse von O wurde berechnet, dass die höchste Oxidation auf die Elemente angewendet wurde. Die Werte der charakteristischen Grenzen sind ebenfalls für das entsprechende Element angegeben.

10.2.2. Massenrekonstruktion der inhomogenen Materialien

Um die Inhomogenität der Materialien in Abfallfässer zu demonstrieren wurde Framatome eine Sonder-Konstruktion – „Skelett“ (siehe Abbildung 46) hergestellt, wobei das Maß vom Skelett einem Referenzfass entspricht. Im Skelett können 48 Referenzpartitionen/Sektoren sowie ein mittiges Rohr mit Materialien befüllt werden. Das leere Skelett wurde zuerst gemessen und die aufgenommenen Messdaten wurden als aktive Untergrundsignale betrachtet. Als nächsten Schritt werden Messungen sowie Auswertungen mit steigender Inhomogenität der Skelett-Befüllung durchgeführt:

1. Alle 48 Partitionen befüllt mit Asilikos
2. 47 Partitionen befüllt mit Asilikos, 1 Partition befüllt mit Melamin (Sektor 311)
3. 46 Partitionen befüllt mit Asilikos, 1 Partition mit Melamin (Sektor 311) sowie 1 Partition befüllt mit Zirkonsand (Sektor 210)
4. 36 Partitionen befüllt mit Asilikos, 12 Partitionen von Höhesegment-3 befüllt mit Melamin (Sektor 301-312),

wobei jede Partition mit demselben Material (Asilikos bzw. Melamin) möglichst homogen (relative Abweichung der Masse < 3 %) gefüllt wird.



Abbildung 46: Skelett mit 48 Partitionen für die Demonstrierung der inhomogenen Materialverteilung. Links: das leere Skelett ohne Befüllung. Rechts: Skelett mit Asilikos homogen befüllt.

- **Homogene Befüllung mit Asilikos**

Bei der homogenen Befüllung wurde insgesamt 259 kg Asilikos verwendet, mit ca. 5,2 kg Material in jeder Partition sowie 10 kg im mittigen Rohr. Die durch IMR rekonstruierte Masse stimmt mit der Referenzmessung von Budapest gut überein.

- **Inhomogenität-1: eine Partition befüllt mit Melamin**

Nach der Messung der homogenen Befüllung mit Asilikos wurde das Material einer Partition (Sektor 311) mit Melamin getauscht. Die Nettomasse von Melamin beträgt 3,5 kg. Das Ziel der Auswertung ist, die räumliche Verteilung der Masseninhomogenität zu identifizieren und die Masse von Melamin quantitativ zu rekonstruieren. Die räumliche Verteilung der rekonstruierten Masse von Stickstoff (Hauptanteil von Melamin) sowie Silizium (Hauptanteil von Asilikos) wird in Abbildung 47 dargestellt.

Die Masse von Stickstoff von 2,3 kg entspricht 3,45 kg Melamin. Dadurch wird die Inhomogenität der Massenverteilung mit guter Übereinstimmung reproduziert.

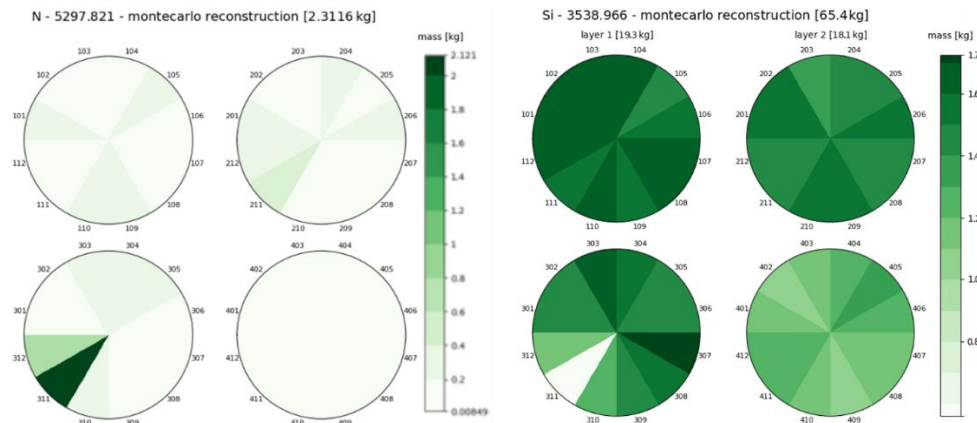


Abbildung 47: Links: Räumliche Verteilung der rekonstruierten Masse von Stickstoff anhand der Auswertung der 5298-keV Linie. Rechts: Räumliche Verteilung der rekonstruierten Masse von Silizium anhand der Auswertung der 3539-keV Linie.

- Inhomogenität-2: zwei Partitionen befüllt mit Melamin und Zirkonsand**

Nach der oben beschriebenen Messung der Inhomogenität-1 wurde eine zusätzliche Partition (Sektor 210), die ursprünglich mit Asilikos befüllt war, mit 10,5 kg Zirkonsand befüllt. Die räumliche Massenverteilung von Gd (Spurelement in Zirkonsand) sowie K (Spurelement in Asilikos) der Inhomogenität-2 wird in Abbildung 48 dargestellt. IMR hat die Masse sowohl von Melamin (Sektor 311) als auch von Zirkonsand (Sektor 210) erfolgreich rekonstruiert.

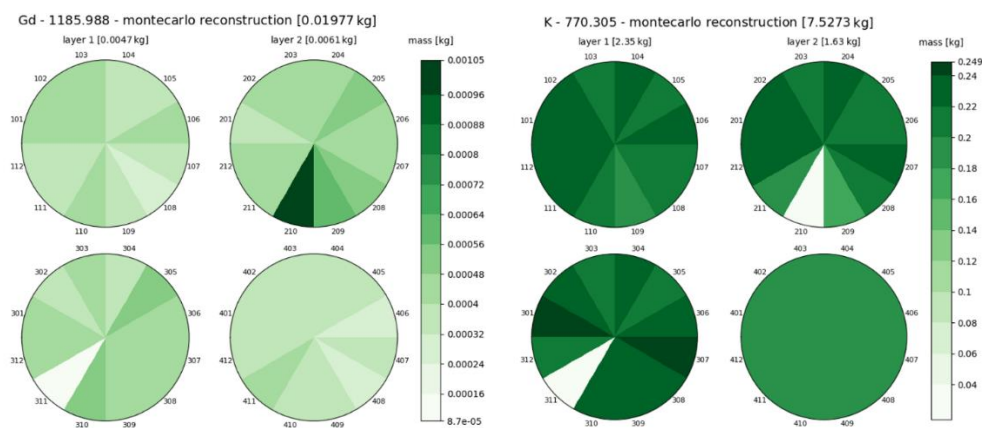


Abbildung 48: Links: Räumliche Verteilung der rekonstruierten Masse von Gadolinium anhand der Auswertung der 1186-keV Linie. Rechts: Räumliche Verteilung der rekonstruierten Masse von Kalium anhand der Auswertung der 770-keV Linie.

- Inhomogenität-3: ein Höhesegment befüllt mit Melamin**

Bei der Messung der Inhomogenität-3 wurde alle 12 Partitionen des dritten Höhesegments mit Melamin befüllt. Die mit Zirkonsand gefüllte Partition in Inhomogenität-2 (Sektor 210) wurde wieder mit Asilikos gefüllt. Die gesamte Masse von Melamin beträgt 41,3 kg. Die Räumliche Verteilung der Masse von Wasserstoff (Hauptanteil von Melamin) wird in Abbildung 49 dargestellt. Die rekonstruierte Masse von Wasserstoff von 2,14 kg entspricht einer Masse von Melamin von ca. 45 kg. Die leichte Überschätzung liegt hauptsächlich bei der Untergrundkorrektur.

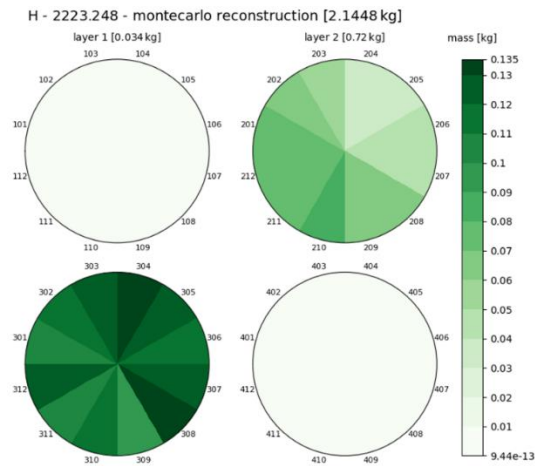


Abbildung 49: Räumliche Verteilung der rekonstruierten Masse von Wasserstoff anhand der Auswertung der 2223-keV Linie

11. AP11: Aufbau und Inbetriebnahme der mobilen Messanlage

Dieses Arbeitspaket ist aufgrund der Änderungen im Projektvorhaben entfallen.

12. AP12: Online-Neutronenflussmessung

12.1. Einbau der Zählrohre

Nach Abschluss der Kalibrierung wurden die ^3He -Zählrohre in der QUANTOM-Anlage verbaut und die Kalibrierdaten in die Auswertesoftware für die Online-Neutronenflussmessungen eingespeist. Erste Flussmessungen wurden an Fässern mit bekanntem Inhalt vorgenommen.

12.2. Inbetriebnahme der Zählrohre

Bei den Messungen des thermischen Neutronenflusses in der Umgebung des Fasses durch die 32 ^3He -Detektoren zeigte sich eine Diskrepanz zwischen den Messdaten und den Simulationsrechnungen: Die Messdaten weichen von den Simulationsergebnissen um etwa 5 - 10 % ab. Nachdem einige geometrische Fehler (fehlerhafte Sollposition der einzelnen Layer, Verkipfung/Zentrierung des Fasses auf dem Drehteller) behoben wurden, die Ergebnisse aber immer noch nicht befriedigend waren, ergab sich, dass eine Totzeitkorrektur der Messdaten notwendig ist. Zwar liegen die Zählraten der einzelnen Kanäle in einem eigentlich völlig unkritischen Bereich von typisch 400 cps bis 6000 cps, allerdings teilen sich alle 16 Kanäle der Mesytec Frontend-Elektronik (MStd16) den analogen Signalweg bis zum ADC. Daher wird die Totzeit eines Kanals von den Zählraten aller anderen Kanäle beeinflusst. Erschwerend kommt hinzu, dass die Quellstärke des Neutronengenerators zeitlich schwankt, die Totzeitkorrektur also dynamisch erfolgen muss. Eine Korrektur mit der Summenzählrate eines Einzelmoduls brachte noch keine ausreichende Verbesserung. Der Anteil der Pulse, die aufgrund der Totzeiteffekts nicht registriert werden, wurde mithilfe des Pulsers in einem Modul abgeschätzt. Mit

einem Korrekturfaktor, der sich aus der gemessenen Pulserrate mit und ohne Neutronen ergibt, ergibt sich eine hervorragende Übereinstimmung der Daten für verschiedene Neutronengeneratorquellstärken. Dazu wurden zwei der Zählrohre ausschließlich zur Messung der Pulser-Rate verwendet. Die Zählrohre, auf die am ehesten verzichtet werden kann, liegen im stationären Teil auf Kanal 6 und im mobilen Teil auf Kanal 8: Das Zählrohr im Kanal 6 (direkt oberhalb des HPGe-Detektors) weist eine deutlich größere Varianz bezüglich der Position des Pulshöhenspektrums auf, was durch ein defektes Zählrohr oder ein defektes Kabel hervorgerufen werden könnte. Gerade letzteres ist aufgrund der sehr engen Biegeradien eine plausible Erklärung. Der Kanal 8 im mobilen Teil ist das Zählrohr, welches den größten Abstand zum Neutronengenerator aufweist und daher üblicherweise die geringste Zählrate liefert. Hier ist der Informationsverlust durch die Deaktivierung des Zählrohres vermutlich am kleinsten.

12.3. Totzeitkorrektur für die ^3He -Zählrohre

Da ein Pulser-Signal nur vom Detektor registriert werden kann, wenn dieser sich nicht in der Totzeit eines vorherigen Detektionsereignisses befindet, nimmt die aufgezeichnete Pulser-Rate ab, wenn die Rate der Detektionsereignisse zunimmt [66]. Ausgehend von einer Poission-Verteilung der Detektionsereignisse lässt sich die Abnahme der registrierten Pulser-Signale mit der Rate der Detektionsereignisse beschreiben. So ergibt sich ein Korrekturfaktor

$$f = \frac{r}{n} = \frac{p_0}{p} + \frac{p_0 - p}{n},$$

der von der Ereignisrate des Pulsers p_0 , der Zählrate des Pulser-Kanals p und der Zählrate der Detektionsereignisse n abhängt. Mit diesem Faktor wurden die Zählraten aller Kanäle korrigiert. Weiterhin wurde berücksichtigt, dass sich die Totzeitkorrektur mit der Quellstärke des Neutronengenerators ändern kann. Es wurde eine effektive Lifetime definiert, welche aus den Totzeitkorrekturen mehrerer Zeitabschnitte bestimmt wurde. Dazu wurde jede Sekunde eine Totzeit bestimmt und aus allen Totzeiten seit Beginn der Messung die effektive Lifetime der Gesamtmessung bestimmt. So konnte jedem ^3He -Detektor eine Lifetime zugeordnet werden, anhand derer die gemessene Zählrate in die Rate der Detektionsereignisse überführt werden konnte.

12.4. Gamma-Messungen mit Rospec

Trotz einer wirksamen Neutronenabschirmung, welche die QUANTOM Messanlage umschließt, resultiert der Betrieb in einer Erhöhung der Gamma- und Neutronendosisleistung in der Umgebung der Anlage. Aus Gründen des Strahlenschutzes, und damit auch relevant für die Genehmigung der Anlage, ist die Charakterisierung des Neutronenfeldes notwendig. Aus diesem Grund sollten im Rahmen des Vorhabens sowohl die auftretende Dosisleistung als auch das Neutronenspektrum außerhalb der Messanlage durch das FINT bestimmt werden. Hierfür sollte unter anderem das am FINT vorhandene Neutronenspektrometersystem „ROtating SPEctrometer“ (ROSPEC) der Firma BTI eingesetzt werden. Die erzielten Ergebnisse sollten genutzt werden um das Strahlenschutzkonzept zu validieren und ggf. Optimierungsmöglichkeiten für die Neutronenabschirmung aufzuzeigen. Zur Unterstützung der Festlegung der Messpunkte und damit verbunden der Messzeitabschätzung wurde seitens AiNT ein Bericht mit den Simulationsergebnissen zum Neutronenfluss, zum energieaufgelösten

Neutronenfluss (Neutronenspektrum) und zur ODL außerhalb der QUANTOM-Anlage zur Verfügung gestellt. Als Messpunkte wurden drei Stellen bestimmt, an denen außerhalb der Abschirmung der QUANTOM-Anlage die höchsten Dosisleistungswerte erreicht werden. Auf Basis des Berichts wurde auch die Abschätzung der benötigten Messzeiten für das ROSPEC vorgenommen. Die abgeschätzte reine Messzeit für Messungen an allen drei Messpunkten bei einer Fluenz von 1×10^6 n/cm² (geforderte Quellenstärke für QUANTOM Neutronengenerator) waren ca. 230.000 Sekunden (ca. 64 Stunden). In der ersten Jahreshälfte 2021 wurde dann beschlossen, dass die vom FINT vorbereiteten Messungen des Neutronenflusses und des Neutronenspektrums außerhalb der Anlage nicht durchgeführt werden sollte. Das Neutronenspektrum außerhalb der Anlage konnte per Simulation bereits gut genug bestimmt werden, so dass der zusätzliche Erkenntnisgewinn durch diese Messungen als gering eingeschätzt wurde. Stattdessen wurden Messungen durchgeführt zur Bestimmung einer Totzeitkorrektur der Neutronenzählraten. Trotz geringer Größe und geringen Gasdrucks der Detektoren hatte sich diese Korrektur als erforderlich für eine präzise Auswertung der Zählraten herausgestellt. Im Laufe der Durchführung der Arbeiten im Projekt QUANTOM® hatte sich außerdem herausgestellt, dass die experimentelle Bestimmung des Neutronenflusses und Neutronenspektrums außerhalb der Messkammer mit dem ROSPEC nicht vernünftig durchführbar gewesen wäre, da der Neutronenfluss des Neutronengenerators lange Zeit erheblich niedriger war als geplant und die Messzeiten für eine experimentelle Bestimmung daher, wie bereits oben abgeschätzt, sehr lang geworden wären.

12.5. Spaltkammer zur Bestimmung der Neutronenquellstärke

Messungen mit Spaltkammern des FINT

Im Laufe des Projektes hat sich herausgestellt, dass die Quellstärke des Neutronengenerators zum einen einer gewissen Schwankung von bis zu 30 % unterliegt und zum anderen sich nicht mit der benötigten Genauigkeit aus den Betriebsparametern des Generators ermitteln lässt. Daher wurden Messungen mit einer U-238-Spaltkammern durchgeführt, um den schnellen Neutronenfluss in der unmittelbaren Umgebung des Neutronengenerators direkt zu messen; eine Methode, die auch bei Messkampagnen mit den Neutronengeneratoren des Fraunhofer INT regelmäßig angewendet wird [66]. Für die Messungen wurden zwei verschieden große Spaltkammern der Firma Centronics verwendet, die zur Überwachung des Neutronenflusses eines Neutronengenerators am INT im Einsatz sind. Beide Spaltkammern bestehen aus einem mit Argon gefüllten Volumen mit Elektroden, die ebenso wie die Schutzbehälter der Kammern selbst aus Edelstahl gefertigt sind. Die Kathoden der Kammern sind mit abgereichertem U₃O₈ beschichtet. Mit Gasvolumina von ca. 40,3 cm³ und ca. 0,7 cm³ sollen laut Hersteller Empfindlichkeiten von 0,1 cps/nv und 3×10^{-3} cps/nv besitzen. Die verwendeten Spaltkammern besitzen eine Beschichtung aus abgereichertem Uran (DU). Das enthaltene ²³⁸U weist erst ab einer Neutronenenergie von ca. 1,4 MeV einen signifikanten Spaltwirkungsquerschnitt auf. Neutronen mit einer geringeren Energie lösen nahezu keine Kernspaltungen im ²³⁸U aus. Durch den unvermeidlichen Anteil an ²³⁵U (normalerweise zwischen 0.2% bis 0.4% für DU, 0.7% für eine Beschichtung mit natürlichem Uran) besitzt auch eine DU-Spaltkammer immer eine endliche Ansprechwahrscheinlichkeit für den thermischen Bereich, das Hauptsignal entsteht jedoch durch

schnelle Neutronen. In der Nähe des Neutronengenerators stammen schnelle Neutronen entweder direkt aus dem Neutronengenerator oder haben nur einige wenige (≈ 3) Streuungen hinter sich. Der Einfluss des Fasses auf das schnelle Neutronenspektrum ist generell klein, es ist kein signifikanter thermischer Neutronenfluss zu erwarten. Daher ist die Zählrate der Spaltkammer eine gute Messgröße für die Quellstärke des Generators. Die notwendige Kalibrierkonstante konnte von AiNT durch Messungen mehrerer Referenzfässer gewonnen werden. Die Daten der Spaltkammer erwiesen sich dabei als so wertvoll, dass diese permanent zur Verfügung stehen sollte. Da die Spaltkammer des Fraunhofer INT eine Leihgabe und zudem auch relativ alt ist, wurde eine neue Spaltkammer mit vergleichbaren Eigenschaften beschafft. Die Auswertung der Spaltkammersignale konnte mit der vorhandenen Mesytec-Elektronik erfolgen.

Auswahl einer neuen Spaltkammer und Elektronik

Es wurden Spaltkammern auf Basis von ^{232}Th und ^{238}U in Betracht gezogen. ^{232}Th weist als Reinisotop keine Empfindlichkeit für thermische Neutronen auf, DU aufgrund des unvermeidlichen Restanteils von ^{235}U hingegen schon. Da ^{238}U jedoch eine fünfmal so große Sensitivität für schnelle Neutronen ausweist wie ^{232}Th und da aufgrund der Positionierung der Spaltkammer im Aufbau kein signifikanter Anteil thermischer Neutronen zu erwarten ist, wurde eine ^{238}U -Spaltkammer ausgewählt. Diese erlaubte zudem einen besseren Vergleich zur FINT-Spaltkammer mit ^{238}U . Beschafft wurde schließlich das Modell Centronic FC165B/1000/238, das neben der erforderlichen Sensitivität auch eine geeignete Geometrie für den Einsatz in der Quantum-Anlage aufweist. Bis zum Erhalt des Gerätes wurden die folgenden Untersuchungen mit den FINT-Kammern durchgeführt. Die Elektronik sollte das Signal der Spaltkammer verstärken, filtern und schließlich als Logik-Signal für die Auswertung zur Verfügung stellen. Für Testzwecke sollen ein Pulsereingang und die verstärkte Pulsform auf einem Ausgang zur Verfügung stehen, Verstärkung und (untere) Diskriminatorschwelle sollten einstellbar sein. Dazu wurde die integrierte Elektronik Mesytec MRS-2000 beschafft. Von der Bauart schien diese sehr gut für QUANTOM geeignet zu sein, zudem war das Mesytec-System bereits am FINT bei der Ansteuerung der Spaltkammern an einem Neutronengenerator im Einsatz. Für den Betrieb der Spaltkammer wird eine Hochspannung im Bereich von 400 – 500 V benötigt. Hier wurde die schon für die ^3He Detektoren verwendete ISEG NHR 20 20r_SHV beschafft, sodass bei einem Ausfall der Hochspannung für die Spaltkammer die Hochspannung eines Detektors als Ersatz genutzt werden kann. Des Weiteren ist so die manuelle Bedienung identisch und die Softwaresteuerung kann mit den schon vorhandenen Routinen erfolgen.

Datenaufnahme Spaltkammern

Die Datenaufnahme des Pulshöhenspektrums erfolgte auf einem Laptop mit der Ortec-Maestro Software. Start und Stopp der Datenaufnahme erfolgte händisch. Die Verbindung zwischen dem Laptop und dem Ortec 919 erfolgt mit einem DPM-USB Adapter. Der Zähler Ortec 974 wurde über seine GPIB-Schnittstelle ausgelesen. Auf dem angeschlossenen Messlaptop wurde ein Skript erstellt, welches den Zähler in den gewünschten Zählmodus versetzt und dann die Resultate in eine Datei schreibt. Für die meisten Messungen wurde eine Messzeit von 5 s vorgewählt. Dabei ergibt sich eine kleine Totzeit zwischen den einzelnen Messungen, welche in der Anleitung mit etwa 50 μs angegeben ist. Bei der Vergleichsmessung mit der Spaltkammer wurde keine Zeitvorwahl genutzt, um diese Totzeit komplett zu eliminieren. Zur weiteren Auswertung wurden die Logdaten des Neutronengenerators mit

den Zählraten der Spaltkammer korreliert. Die Daten wurden mithilfe eines Python-Skripts zusammengeführt und für die folgenden Plots und Auswertungen verwendet.

Testmessungen mit Spaltkammern und Elektronik des FINT

Es wurden zunächst Testmessungen am FINT durchgeführt, um die Funktionalität der vorhandenen Spaltkammern in Verbindung mit der nachgeschalteten Messelektronik zu überprüfen. Beide Spaltkammern wurden nacheinander getestet; die Einstellungen der Elektronik unterscheiden sich je nach Kammer in der angelegten Versorgungsspannung (400 V bzw. 500 V) und um den einzustellenden Wert der Diskriminatorschwelle. Die Ermittlung der Position dieser Schwelle war ein wesentlicher Punkt der Testmessungen. Die Messungen wurden mit einer DT-Röhre durchgeführt; somit lag die mittlere Energie der emittierten Neutronen bei 14 MeV.

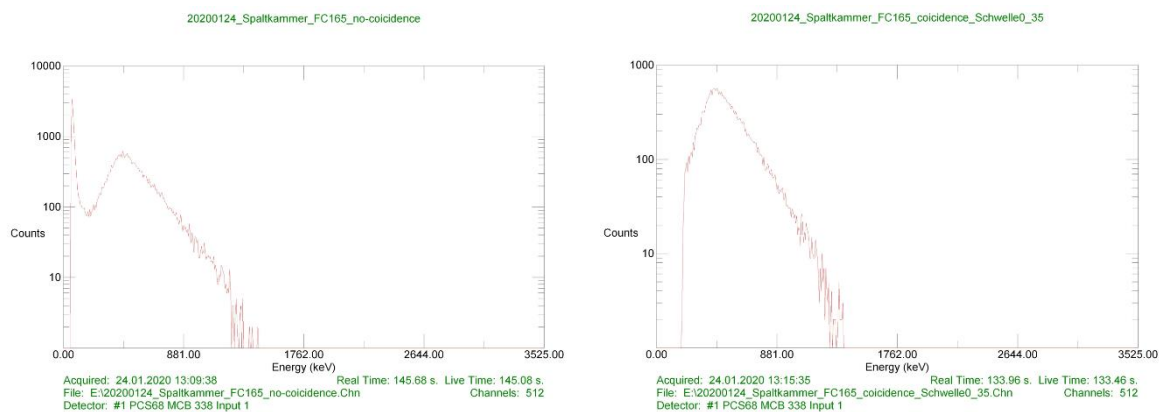


Abbildung 50: Spektrum der größeren Spaltkammer des INT bei Bestrahlung mit 14 MeV-Neutronen in 20 cm Abstand zum Target des Neutronengenerators. Vollständiges Spektrum (links) und Spektrum nach Anwendung der Diskriminatorschwelle (rechts).

Das Spektrum zeigt zwei Peaks, einen niederenergetischen aufgrund von Alphas und Gammas aus dem Betrieb des Neutronengenerators und einen höherenergetischen aufgrund von Fragmenten des Spaltmaterials. Um nur Ereignisse im Spektrum zu registrieren, die auf Neutroneneinfang zurückgehen, wird der linke Peak durch eine geeignete Wahl der Diskriminatorschwelle abgeschnitten.

Testmessungen Spaltkammern

Für beide Spaltkammern wurden das Ansprechverhalten auf den Fluss des Neutronengenerators getestet. Dabei wurden für verschiedene Abstände Kammer zu Generator die Beschleunigungsspannung und die Mikrowellenleistung variiert. Generell wurde eine gute Übereinstimmung der elektrischen Leistungsaufnahme des Generators (aus der gemessenen Stromstärke) mit den gemessenen Zählraten gefunden. Insbesondere bei einem kurzzeitigen Ausfall des Generators ist die zeitliche Übereinstimmung der Einbrüche in Strom und Zählrate gut erkennbar (Abbildung 51). Während bei 8 cm Abstand die Zählraten der großen Spaltkammer zu gering waren, um in der gewünschten Messzeit (5 s) statistisch signifikante Ergebnisse zu liefern, wurde dies bei Platzierung direkt neben dem Generator erreicht. Die Variationen von Beschleunigungsspannung und Mikrowellenleistung zeigten zwei unerwartete Effekte. Es ist erkennbar, dass die Zählrate nicht nur von den frei wählbaren Parametern Beschleunigungsspannung und Mikrowellenleistung abhängt (Abbildung 52). So fällt nach einem Generatorausfall um ca. 10:10 Uhr der Target-Strom und auch die

Zählrate bei unveränderten Parametern ab. Ebenso fällt nach dem Übergang von 125 kV auf 130 kV der Target-Strom und auch die Zählrate auf einen relativ stabilen Wert ab. Weiterhin wurden über einen Zeitraum von ca. 2 Stunden sowohl die große Spaltkammer als auch eine Aktivierungsfolie aus Titan (Reinheit > 99,9%) bestrahlt. Die Datenaufnahme der Spaltkammer erfolgte hier kumuliert, um den gesamten Fluss aufzunehmen und mit der Folie zu vergleichen. Zur Bestimmung der Fluenz wurden die Kalibrierdaten aus für eine Neutronenenergie von 5 MeV verwendet. Ergebnisse für 2,45 MeV stehen für die genutzten Kammern leider nicht zur Verfügung, der ^{238}U -Spalt-Wirkungsquerschnitt ändert sich zwischen 5 MeV und 2,45 MeV aber nur um weniger als 1%. Daher sollte dies nur einen geringen Einfluss auf die Ergebnisse haben. Stärker dürfte der Beitrag der epithermischen und thermischen Neutronen sein, da der Neutronengenerator in unmittelbarer Nähe der Wand des AiNT-Technikums und der Quantum-Anlage mit der großen Moderatormenge aufgebaut war. Schon in dem Arbeitsbericht wurde diskutiert, dass die verwendete Kammer vermutlich eine gewisse Ansprechwahrscheinlichkeit auf thermische Neutronen besitzt, vermutlich durch einen nicht verschwindenden Anteil von ^{235}U im aktiven Material.

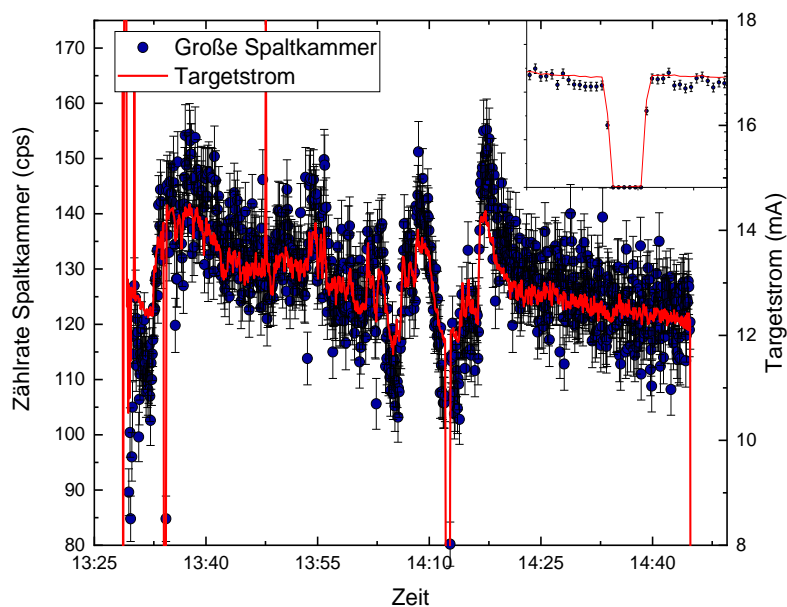


Abbildung 51: Zählraten und Target-Strom für die nahe Anordnung der Spaltkammer zum Generator. Im Inset ist ein Ausfall des Generators dargestellt. Dies zeigt die gute zeitliche Übereinstimmung des Signals der Spaltkammer mit den Logdaten des Neutronengenerators.

Nach den Messungen mit der großen Spaltkammer war klar, dass die kleine Spaltkammer für realistische Messzeiten eine zu geringe Effizienz besitzt. Um die tatsächliche Zählrate zu bestimmen, wurde trotzdem eine kurze Messung mit dieser Spaltkammer durchgeführt. Die mittlere Zählrate der kleinen Spaltkammer liegt bei 1,45 cps (ca. 1/93 des Wertes der großen Kammer). Um mit dieser Spaltkammer eine Unsicherheit unter 1% zu erreichen, wäre eine Messzeit von fast 2 h notwendig.

Bewertung

Die kleine Spaltkammer ist für die Online-Bestimmung des Neutronenflusses wegen der viel zu geringen Zählrate ungeeignet. Mit der großen Spaltkammer ist dies durchaus möglich. Allerdings muss auch hier die Montage der Spaltkammer möglichst dicht an der Oberfläche des Neutronengenerators erfolgen, wenn das Ziel die Beobachtung von Generator-Fluktuationen auf einer Zeitskala von einigen

Sekunden ist. In dieser Konfiguration konnte eine Zählrate von ca. 135 cps erreicht werden. Um den mittleren Fluss während einer Fassmessung zu bestimmen, könnte die große Spaltkammer auch in einer größeren Distanz montiert werden.

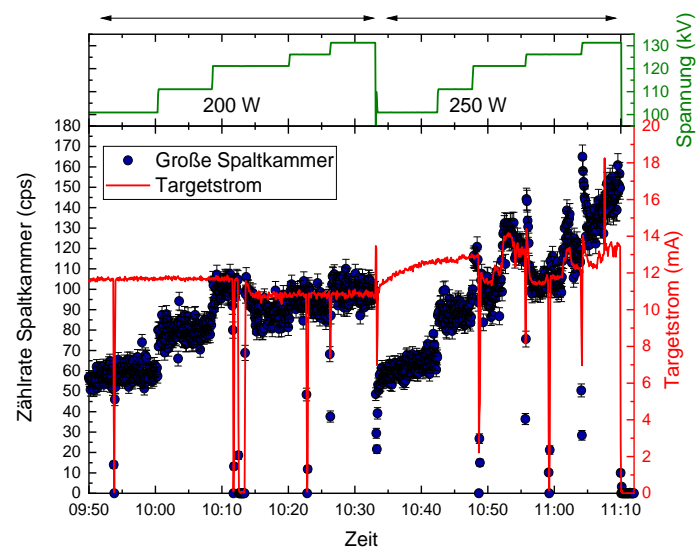


Abbildung 52: Zählrate, Target-Spannung und Target-Strom als Funktion der Zeit für zwei verschiedene Einstellungen der Mikrowellenleistung. Man erkennt, dass der Neutronen-Output von Target-Spannung und Mikrowellenleistung abhängt. Bei 200 W und 120 kV ändert sich ohne weitere äußere Einflüsse nach einem Generatorausfall (ca. 10:12 Uhr) der Target-Strom.

Die vorliegenden Daten zeigen deutlich, dass eine absolute Bestimmung des Neutronenflusses nur aus den Log-Daten des Neutronengenerators unmöglich ist. Bei einer fixen Einstellung von Mikrowellenleistung und Target-Spannung ergeben sich deutliche zeitliche Fluktuationen des gemessenen Neutronenflusses, die stark mit dem Target-Strom korrelieren. Verschiedene Spannungen und Mikrowellenleistungen ergeben Target-Ströme und Neutronenflüsse, die nicht direkt von den Eingangsparametern abhängen. Dies ist ein Hinweis darauf, dass der Strom von Vorgängen im Inneren des Generators abhängig ist², der nicht in den anderen Messwerten offensichtlich ist. Daher ist es notwendig, den schnellen Primärfluss des Neutronengenerators online mit einer Spaltkammer zu messen. Aus den Ergebnissen der Variation der Beschleunigerspannung wurde versucht, einen Zusammenhang zwischen Target-Strom und -spannung einerseits und der Zählrate andererseits herzuleiten. Hierzu wurde der Ansatz gemacht, dass sich die Zählrate als das Produkt von zwei Funktionen schreiben lässt, die nur vom Strom bzw. der Spannung abhängen:

$$R = f(U) * g(I) \quad (1)$$

Die Funktionen f und g werden dann in eine Taylor-Reihe entwickelt. Bei einer Entwicklung bis zur dritten Ordnung zeigt sich, dass ein erheblicher Anteil der Werte außerhalb des 1σ -Bereichs liegt und noch eine signifikante Anzahl Punkte sogar außerhalb des 3σ -Bereichs. Für die aktuelle Quantom-Anlage ist daher nicht abzusehen, dass diese Auswertung eine Online-Messung des schnellen Flusses mit einer Spaltkammer mit der erforderlichen Sicherheit ersetzen kann.

² Beispielsweise vom Fluss des D₂-Gases durch die Ionenquelle, der Ionisierung durch die Mikrowelle oder der reflektierten Leistung der Mikrowelle oder durch die Temperaturverteilungen innerhalb des Generators.

13. AP13: Experimentelle Validierung mit radioaktiven Abfällen

Bei der Planung bzw. Vorbereitung der erstmaligen Messung von radioaktiven Abfallfässern im Strahlenschutzbauwerk von der Firma AINT wurden folgende Arbeiten erledigt:

- Erstellung eines technischen Berichtes zur „Handhabung der radioaktiven Fässer im Technikum von AINT“ [24]
- Untersuchung und Erstellung des Dokumentes „Annahmebedingungen radioaktiver Abfallfässer im Technikum der Firma AINT GmbH für die Messanlage QUANTOM“ [25].
- Erstellung diverser Gefährdungsbeurteilungen (z. B. für die Bedienung der Messanlage QUANTOM und für die Handhabung der radioaktiven Fässer).
- Durchführung der ersten Messkampagne mit radioaktiven Abfallfässern

Framatome unterstützte AiNT bei der Durchführung von MCNP-Simulationsstudien sowie bei der Qualitätssicherung des finalen Berichtes. Es wurde insgesamt 16 Messungen und Auswertungen im Rahmen der Validierung von radioaktiven Abfallfässern geplant. Insgesamt wurden 11 Messungen und Auswertungen durchgeführt. Das Ziel war eine größere und repräsentativere Anzahl von realen radioaktiven Abfallfässern zu messen und auszuwerten. Je größer die Stichprobenprüfung ist, desto zuverlässiger sind die Ergebnisse. Schließlich war es geplant diese Ergebnisse mit der Zerlegungsmethode der Betreiberorganisation zu vergleichen. Dieser Vergleich ist nicht Teil des Fördervorhabens, sondern die Ergebnisse werden ausschließlich der Betreiberorganisation zur Verfügung gestellt. Als weiterführende Validierungskampagne wurden Messungen an realen radioaktiven Fässern eines Ablieferungspflichtigen durchgeführt. Die Messungen wurden mit den oben beschriebenen Methoden ausgewertet und die Ergebnisse dem Abfallverursacher präsentiert. Da keine Freigabe der Ergebnisse des Abfallverursachers vorliegt, können die Messungen hier nicht näher beschrieben werden.

In einer weiteren Kampagne wurden Fässer der Jülicher Entsorgungsgesellschaft für Nuklearanlagen mbH (JEN) mit der QUANTOM-Messanlage gemessen. Diese beinhalten keine radioaktiven Stoffe, wurden aber so von der JEN zusammengestellt, dass sie große Ähnlichkeit zu deren realen Abfallfässern besitzen. Insgesamt wurden 7 Fässer mit Referenzmaterialien und ein Leerfass vom gleichen Fasstyp für die Untergrundmessung zur Verfügung gestellt. Die Referenzmaterialien waren dabei nicht lose im Fass verteilt, sondern wurden zunächst in Fässer verpackt, die verpresst wurden. Von diesen Presslingen wurden 1 oder 2 in jeweils ein Referenzfass eingebracht. Vom Hersteller liegt eine grobe Angabe vor, welche Referenzmaterialien verwendet wurden. Es liegt allerdings keine Zusammensetzung aufgeschlüsselt nach Elementen zum Vergleich der Ergebnisse vor. Eine Auflistung der Referenzfässer zusammen mit den Angaben über deren Inhalt ist in Tabelle 8 gegeben. Dabei ist die Bezeichnung der Pressfässer so gewählt, dass diese von oben angefangen beziffert werden. Somit ist Pressfass-1 das obere und Pressfass-2 das untere, falls es zwei Pressfässer gibt.

Tabelle 8: Vorhandene Dokumentation zu den verwendeten Zielfässern. Bekannt gegeben ist die Nettoabfallmasse, die Höhe der einzelnen Pressfässer und eine grobe Beschreibung des Inhalts der Pressfässer.

Fass Nr.	Netto Abfallmasse [kg]	Höhe Pressfass-1 [cm]	Höhe Pressfass-2 [cm]	Inhalt Pressfass-1	Inhalt Pressfass-2
ZF1	202,8	10	14,5	80 kg Fe	92 kg Fe
ZF2	55,8	7	6,5	13 kg Dämmwolle	12 kg Dämmwolle
ZF3	155,8	16,5	11,5	33 kg Kabel, 29 kg Elektroschrott	30 kg Kabel, 33 kg Elektroschrott

ZF4	72,2	27,5	-	57,5 kg PVC	-
ZF5	187,2	18	19	36 Kg Fe, 1,5 kg E-Schrott, 9,5 kg Kabel, 8,5 kg PVC, 8,5 kg Bauschutt	53 Kg Fe, 10 kg E-Schrott, 10 kg Kabel, 2 kg PVC, 11 kg Bauschutt, 4 kg Sand
ZF6	221,2	27	26	41 kg 3xTonziegel, 20 kg Granulat, 40 kg Salz	20 kg Granulat, 80 kg Salz
ZF7	117,6	23,5	-	102 kg Bauschutt	-

Die Validierung wird hier als erfolgreich angesehen, wenn Elementzusammensetzungen gemessen werden, die sich mit den Angaben des Herstellers erklären lassen. Außerdem sollte bei inhomogenen Pressfässern, bzw. Unterschieden zwischen zwei Pressfässern in einem Referenzfass die Inhomogenität nachgewiesen werden können. Bei der Messung und Auswertung wird nicht auf die zusätzlichen Informationen, wie die Füllhöhe, zurückgegriffen. Daher werden alle Höhensegmente vermessen und auch der Abstand nicht an die Höhe der Pressfässer angepasst. Folgend werden die Ergebnisse von Fässern ZF1, ZF3, ZF4 und ZF6 als Beispiel dargestellt.

- **Zielfass-1: Fe**

Beide Pressfässer in Zielfass-1 sind laut Dokumentation mit Eisen (Fe) gefüllt. Durch die geringen Höhen der Pressfässer entspricht das ausgefüllte Volumen ungefähr dem untersten Segment (22 cm) in der Messung. Abgesehen vom Referenzmaterial befinden sich in den Referenzfässern noch die Pressfässer selbst. Über deren elementare Zusammensetzung liegt keine Dokumentation vor. Die gesamte Nettoabfallmasse beträgt laut Dokumentation 202,8 kg. In der Auswertung der Messung wird lediglich Fe identifiziert als Inhalt des Referenzfasses. Es wird daher geschlossen, dass die verwendeten Pressfässer im Wesentlichen auch aus Fe bestehen. Durch Massenrekonstruktion wird die Masse von $200,5 \text{ kg} \pm 15 \text{ kg}$ mit guter Übereinstimmung reproduziert.

- **Zielfass-3: Elektroschrott**

Laut Dokumentation sind in Zielfass-3 in beiden Pressfässern Kabel und Elektroschrott in ähnlichem Verhältnis enthalten. Es liegt keine weitere Angabe über die Elementzusammensetzung vor. Erwartet werden Cu, als Hauptbestandteil von Kabeln und weitere Metalle sowie Kunststoffe als Bestandteile des Elektroschrotts. Aus der Differenz zwischen Referenzmaterial und Nettoabfallmasse ergibt sich eine Masse für die zwei Pressfässer von 30,8 kg. Die identifizierten Elemente mit ihren rekonstruierten Massen sind in Tabelle 9 dargestellt.

Tabelle 9: Ergebnisse der Massenrekonstruktion für Zielfass-3. **Der Kohlenstoffanteil wird anhand der chemischen Zusammensetzung von PVC ($\text{C}_2\text{H}_3\text{Cl}$) als Isolierungsmaterial berechnet.

Element	Rekons. Masse [kg]	Unsicherheit der rekons. Masse [%]
H	1,3	20
C**	10,5	-
Al	15,0	31

Cl	15,5	15
Ti	1,8	9
Cr	10,2	22
Mn	4,3	12
Fe	30,8	18
Ni	4,5	14
Cu	61,8	21

Die rekonstruierte Masse für Fe von $30,8 \text{ kg} \pm 5,5 \text{ kg}$ stimmt mit der dokumentierten Masse der Pressfässer von 30,8 kg überein. Für Cu wird eine Masse von 61,8 kg rekonstruiert. Cu wird als Hauptbestandteil der dokumentierten 63 kg Kabel vermutet. Außerdem kann Cu aber auch ein Bestandteil der 62 kg Elektroschrott sein. Es werden geringere Massen von Al, Ti, Cr, Mn und Ni rekonstruiert. Eine Bewertung, inwiefern diese tatsächlich im Elektroschrott vorhanden sind, ist aufgrund fehlender Dokumentation nicht möglich. Ebenfalls nicht dokumentiert ist, welche Kunststoffe in den Referenzmaterialien vorhanden sind. Die weltweit am häufigsten produzierten Kunststoffe sind PE (C_2H_4) und PVC ($\text{C}_2\text{H}_3\text{Cl}$).

- Zielfass-4: PVC**

In Zielfass-4 sind laut Dokumentation in nur einem Pressfass 57,5 kg PVC enthalten. Daraus ergibt sich eine erwartete elementare Zusammensetzung gemäß der chemischen Formel für PVC: $\text{C}_2\text{H}_3\text{Cl}$. Aus der Differenz zwischen Referenzmaterial und Nettoabfallmasse ergibt sich eine Masse von 14,7 kg für die Tara-Masse des Pressfasses. In der Auswertung wird zusätzlich zu den erwarteten Elementen Bor identifiziert. Bor kann als Bestandteil von Kunststoffen auftreten, allerdings nicht in reinem PVC. Außerdem wurden Massen für H von $7,8 \text{ kg} \pm 1,5 \text{ kg}$ und für Cl von $2,5 \text{ kg} \pm 0,6 \text{ kg}$ rekonstruiert. Für reines PVC würde aber gemäß der Formel $\text{C}_2\text{H}_3\text{Cl}$ eine größere Masse von Cl als von H erwartet. Aus den Ergebnissen lässt sich also ein Widerspruch mit der Dokumentation ableiten. Der Hersteller will versuchen die Dokumentation an dieser Stelle zu überprüfen und ggf. detailliertere Angaben zu den verwendeten Kunststoffen zu machen. Diese Angaben liegen allerdings aktuell noch nicht vor. Mit der Annahme dass nicht nur PVC sondern auch PE als Kunststoff enthalten ist, wird die Massenrekonstruktion durchgeführt. Aus der Auswertung ergibt sich, dass das Referenzmaterial zu ca. 10 % aus reinem PVC besteht und zu 90 % aus borhaltigem PE. Die entsprechende rekonstruierte Massenverteilung ist in Tabelle 10 dargestellt.

Tabelle 10: Ergebnisse der Massenrekonstruktion für Zielfass-4. **Kohlenstoffanteil wird anhand der chemischen Zusammensetzung von PVC sowie PE berechnet.

Element	Rekons. Masse [kg]	Uns. der rekons. Masse [%]
H	7,8	21
C**	47,1	-
Cl	2,5	23
Fe	15,0	21

Die rekonstruierte Masse von $15,0 \text{ kg} \pm 3 \text{ kg}$ Fe stimmt gut mit der Masse des Pressfasses aus der Dokumentation von 14,7 kg überein.

- **Zielfass-6: Granulat**

Die Pressfässer aus Zielfass-6 enthalten beide Salz und nicht näher dokumentiertes Granulat. In Pressfass-1 sind zusätzlich 41 kg Tonziegel dokumentiert. Die Pressfässer sind relativ groß, sodass im untersten Höhensegment nur Pressfass-2 liegt. Im zweiten Höhensegment sind Teile beider Pressfässer vorhanden und im dritten Höhensegment nur ein Teil von Pressfass-2. In Höhensegment-4 befindet sich kein Füllmaterial. Die rekonstruierten Massen der identifizierten Elemente sind in Tabelle 11 dargestellt.

Tabelle 11: Ergebnisse der Massenrekonstruktion für Zielfass-6. *Der Sauerstoffanteil wird berechnet durch die Annahme der höchsten Oxidation der Elemente.

Element	Rekons. Masse [kg]	Uns. der rekons. Masse [%]
H	7,2	27
C**	42,8	-
O*	40,5	-
Na	22,5	19
Al	26,8	26
Si	13,9	16
Cl	40,2	14
K	5,8	22
Ti	1,1	32
Fe	20,2	15

Die Tara-Masse der Pressfässer ergibt sich aus der Dokumentation zu 20,2 kg. Dies stimmt mit der rekonstruierten Masse für Fe von $20,2 \text{ kg} \pm 3,3 \text{ kg}$ überein. Für Salz ist keine Angabe über die chemische Zusammensetzung gegeben. In der Auswertung werden Cl, Na und K rekonstruiert. Es wird daher davon ausgegangen, dass sowohl NaCl als auch KCl enthalten sind. In Abbildung 53 sind die Verteilungen für Cl dargestellt. Für die Verteilung ergibt sich, dass der Großteil der Masse im untersten Höhensegment rekonstruiert wird. Für die enthaltenen Tonziegel liegt ebenfalls keine Information bezüglich der elementaren Zusammensetzung vor. Es wird eine Masse von 41 kg angegeben. Eine Annahme ist, dass es sich hauptsächlich um SiO_2 handelt. Da jeweils 20 kg Granulat pro Pressfass ohne weitere Spezifikation angegeben werden, ist hier eine Überprüfung der Messwerte nicht möglich. Der rekonstruierte Wasserstoff ist ein Hinweis darauf, dass es sich um Kunststoffe handelt. Da sich viel Salz und damit Cl zusätzlich im Fass befindet, lässt sich nicht beurteilen, ob es sich mehrheitlich um PE oder PVC handelt. Sonstige Elemente mit kleinerer rekonstruierter Masse, wie z.B. Al können sich sowohl in den Tonziegeln als auch im Granulat befinden.

- **Zusammenfassung**

Insgesamt konnten alle 7 zur Verfügung gestellten Fässer gemessen und ausgewertet werden. Grundsätzlich fällt eine abschließende Beurteilung der Messergebnisse in einigen Fällen schwierig, da keine detaillierte Elementzusammensetzung der verwendeten Referenzmaterialien zur Verfügung steht. Dennoch ist es möglich in vielen Fällen die grobe Dokumentation zu bestätigen bzw. auch auf

elementarer Ebene zu konkretisieren. Teilweise, wie z.B. in Zielfass-4 wurden Widersprüche zur Dokumentation identifiziert. Sowohl was die identifizierten Elemente als auch deren Massenanteil angeht, stimmen diese nicht mit der Angabe von PVC überein. Eine Nachfolgende Überprüfung der Dokumentation muss zeigen, ob es ein Problem in den Messergebnissen gibt, oder ob die Dokumentation durch eine Konkretisierung in Übereinstimmung mit den Messwerten gebracht werden kann.

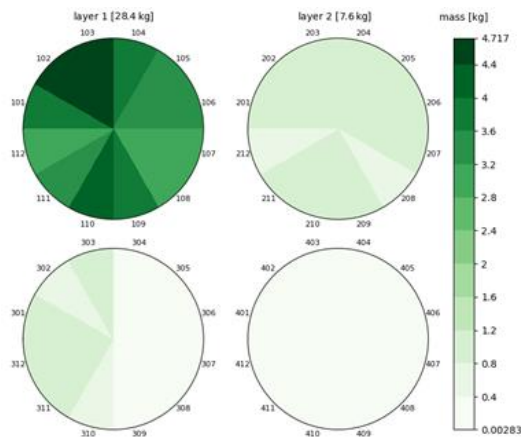


Abbildung 53: Massenverteilungen für CI. Zu erkennen ist die hohe Massenkonzentration in Höhensegment 1.

14. AP14: Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse

Beim QUANTOM-Messsystem werden als Messdaten orts aufgelöste Gamma-Spektren erfasst. Die Messergebnisse, orts aufgelöste Elementmassenverteilungen im Fass, werden numerisch mit der automatisierten Software IMR ermittelt. Nach der Massenrekonstruktion sollen für jede Messung zusätzlich die charakteristischen Grenzen bestimmt werden. Dieses Kapitel beschreibt die entsprechenden mathematischen Modelle der Auswertung, der Behandlung der Messunsicherheiten und der Berechnung der charakteristischen Grenzen gemäß DIN ISO 11929 [45].

14.1. Charakteristische Grenzen

Im Rahmen der Auswertung von QUANTOM Messungen existiert keine analytische Form für die Berechnung der charakteristischen Grenzen, Erkennungs- und Nachweisgrenze gemäß DIN EN ISO 11929. Stattdessen werden sie über numerische Ansätze für die Lösung von Optimierungsproblemen und Monte-Carlo-Verfahren bestimmt. Dafür ist es erforderlich, die mit den Messergebnissen verbundene Unsicherheit zu quantifizieren. Daraus werden die charakteristischen Grenzen, Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und oberer und untere Grenze des Vertrauensbereichs berechnet. Im Folgenden wird das Verfahren abstrakt für eine nicht-negative Messgröße eingeführt. Allgemeine Normen dafür im Bereich der Kernstrahlungsmesstechnik sind in der Reihe DIN EN ISO 11929 dargelegt. Sie normieren die Beurteilung von Messergebnissen, die Bewertung einer Messmethode und den Inhalt eines Messprotokolls und beruhen auf der Bayes'schen Statistik. Der erste Teil behandelt die elementaren Anwendungen (vornehmlich 1D Modelle mit approximativ normalverteilten Zufallsvariablen). DIN EN ISO 11929-2 befasst sich mit fortgeschrittenen Anwendungen und der Berechnung charakteristischer Grenzen mittels Monte-Carlo-Methode. Bei QUANTOM wird vornehmlich Teil 2 der Norm gefolgt, da Unsicherheiten für das Modell der

Auswertung für QUANTOM mit der Monte-Carlo-Methode bestimmt werden müssen. Ein Modell der Auswertung wird definiert über die folgende Beziehung:

$$Y = G(X_1, \dots, X_m) = G(\vec{X}),$$

wobei Y die nicht-negative Messgröße ist und G die Modellfunktion. In diesem Dokument werden physikalische Größen durch Großbuchstaben wie Y dargestellt und ihre Werte durch die entsprechenden Kleinbuchstaben wiedergegeben. Meistens kann Y nicht direkt gemessen werden und wird daher durch die Eingangsgrößen X_1, \dots, X_m für $i = (1, m)$ wie Nettopeak-Zählrate aus Gammaskpektren oder Effizienzen bestimmt. Dann ist die Schätzung y des wahren Wertes \tilde{y} der Messgröße Y gegeben durch

$$y = G(x_1, \dots, x_m) = G(\vec{x}),$$

Die entsprechende Unsicherheit ist $u(y)$, die die Unsicherheit bzgl. den wahren Wert \tilde{y} quantifiziert. In ähnlicher Weise ist x_i die Schätzung der Eingangsgröße X_i und auch sie ist unsicher. Die Unsicherheit $u(y)$ wird anhand der zugehörigen Unsicherheiten $u(x_i)$ berechnet. Nach dem Gesetz der Fortpflanzung von Unsicherheiten gilt

$$u^2(y) = \sum_{i=1}^m c_i^2 \cdot u^2(x_i),$$

wobei der Sensitivitätskoeffizient als $c_i = \left. \frac{(\partial G)}{\partial x_i} \right|_{X_1=x_1, \dots, X_m=x_m}$ geschrieben wird.

Die Monte-Carlo-Methode wird angewendet, um die Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion (WDF) für Y zu bestimmen. Aufgrund der unsicheren Natur der Messung ist es prinzipiell möglich einen physikalischen Effekt (das Vorhandensein eines Elementes in der Probe) fälschlicherweise zu identifizieren bzw. auch im Falle eines Nicht-Vorhandenseins zu identifizieren. Daher werden in den Folgenden die charakteristischen Grenzen definiert, die es ermöglichen, die Messung hinsichtlich dieser Effekte quantitativ zu bewerten.

- **Erkennungsgrenze (EKG)**

Dieser Wert wird verwendet, um zu entscheiden, ob der durch die Messgröße zu quantifizierende physikalische Effekt vorhanden ist oder nicht. Er wird unter der Annahme bestimmt, dass der physikalische Effekt nicht vorhanden ist. Die Erkennungsgrenze ist definiert durch die Wahrscheinlichkeit

$$P(y > y^* | \tilde{y} = 0) = \alpha,$$

wobei y^* die Erkennungsgrenze ist, α die Wahrscheinlichkeit einer falsch-positiven Entscheidung (oder einer falschen Entscheidung) ist. Implizit gilt dadurch

$$y^* = k_{1-\alpha} \cdot \tilde{u}(0),$$

wobei $k_{1-\alpha}$ das $1 - \alpha$ -Quantil der Normalverteilung ist, $\tilde{u}(\tilde{y})$ die Unsicherheit in Abhängigkeit vom wahren Wert \tilde{y} dargestellt. Für die Berechnung der Erkennungsgrenze wird dieser Wert als Null gesetzt. Empfohlen wird in der DIN EN ISO 11929 $\alpha=0,05$ zu wählen. Damit ergibt sich als Quantil

$k_{1-\alpha} = 1,65$. Dies bedeutet, dass die Wahrscheinlichkeit einer falschen Entscheidung $\alpha = 5\%$ beträgt. Dies wird als Fehler erster Art bezeichnet. Überschreitet das Messergebnis y die Erkennungsgrenze y^* , so wird daraus geschlossen, dass der physikalische Effekt in der Messung vorliegt. Ist der Messwert kleiner als die Erkennungsgrenze, so muss daraus geschlossen werden, dass der physikalische Effekt nicht vorliegt.

- **Nachweisgrenze (NWG)**

Dieser Wert gibt den kleinsten wahren Wert der Messgröße an, der mit der angewandten Messmethode noch erfasst werden kann. Anhand dieses Wertes kann entschieden werden, ob das Messverfahren gegebene Anforderungen erfüllt. Sind dies Anforderungen erfüllt, dann ist das Messverfahren für den vorgesehenen Messzweck geeignet. Er wird auf der Grundlage der Erkennungsgrenze berechnet als

$$P(y > y^* | \tilde{y} = y^\#) = \beta,$$

wobei $y^\#$ die Nachweisgrenze ist. Die Nachweisgrenze wird gemäß dem ISO/IEC Guide 98-3 (GUM) implizit definiert durch

$$y^\# = y^* + k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}(y^\#),$$

wobei $k_{1-\beta}$ das $1 - \beta$ -Quantil der Normalverteilung ist. Hier ist die Irrtumswahrscheinlichkeit β die Wahrscheinlichkeit zu entscheiden, dass der wahre Wert der Messgröße gleich Null ist, obwohl der physikalische Effekt in Wahrheit vorliegt. Typischerweise wird dafür derselbe Wert gewählt wie für α . Dann ist $k_{1-\alpha} = k_{1-\beta} = 1,65$. EKG und NWG sind graphisch in Abbildung 54 dargestellt. Darin lässt sich erkennen, dass sich die Erkennungsgrenze aus der Unsicherheit auf dem wahren Wert 0 ergibt und die Nachweisgrenze der Messwert ist, dessen Verteilungsfunktion (bestimmt durch die Messunsicherheit) mit gegebener Wahrscheinlichkeit über der Erkennungsgrenze liegt.

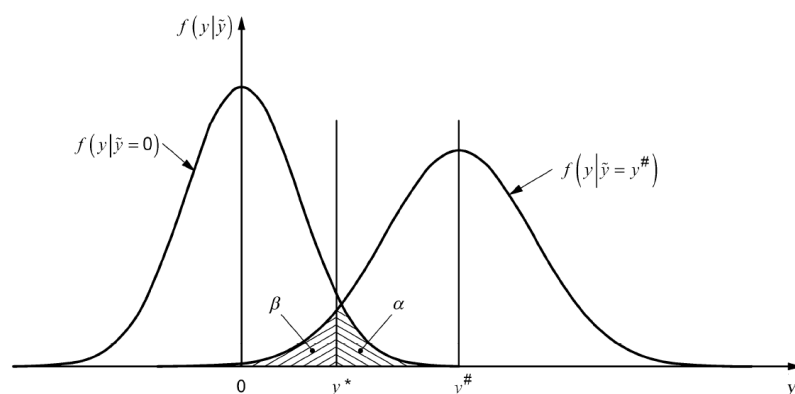


Abbildung 54: Illustration der Erkennungsgrenze und der Nachweisgrenze [46].

- **Grenzen des Überdeckungsintervall (Konfidenzintervall)**

Das Konfidenzintervall $[y_{low}, y_{up}]$ ist der Bereich, der den wahren Wert der Messgröße mit einer vorgegebenen Wahrscheinlichkeit einschließt. Es ist durch eine vorgegebene Wahrscheinlichkeit $1 - \gamma$ gegeben, wobei γ die verbleibende Wahrscheinlichkeit ist, dass der wahre Wert außerhalb des Intervalls liegt. Gemäß der Empfehlung der DIN EN ISO 11929 wird diese Wahrscheinlichkeit auf 95 % festgesetzt. Abbildung 55 zeigt beispielhaft die Massenverteilung von zwei verschiedenen Gamma-

Linien aus Validierungskampagne als Ergebnis der Massenrekonstruktion mit Monte-Carlo-Sampling. Die oberen und unteren Grenzen des Überdeckungsintervalls decken dabei 95 % der aufgetretenen Werte (blau hinterlegter Bereich) ab. Die Nicht-negativität des Messergebnisses wird dabei bereits durch das Verfahren der Massenrekonstruktion garantiert, unabhängig von den Unsicherheiten Einzelparametern (im Gegensatz zum einfachen Verfahren in DIN EN ISO 11929-1).

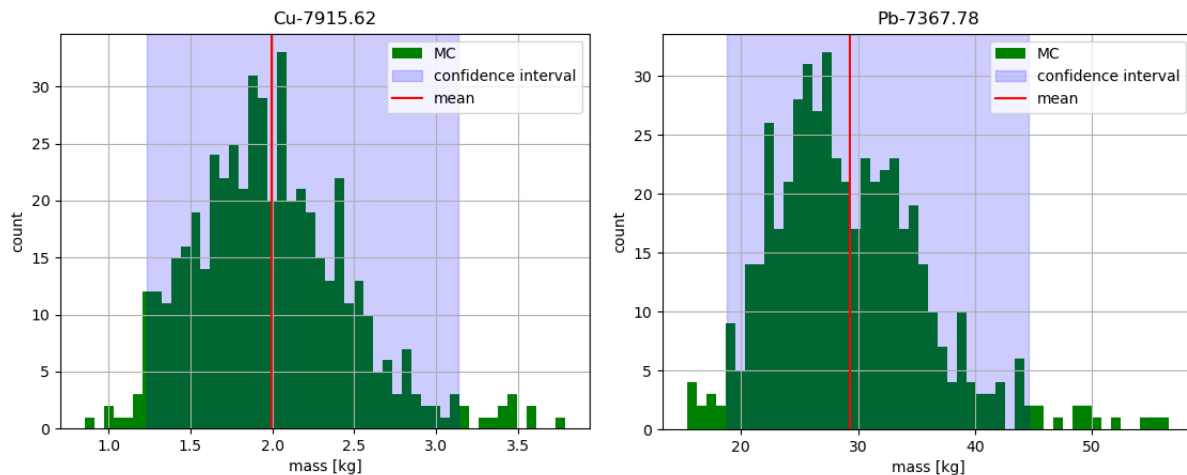


Abbildung 55: Massenverteilung der gewählten Gamma-Linie aus Validierungskampagne als Ergebnis der Massenrekonstruktion mit Monte-Carlo-Sampling (MC).

- **Implementierung der charakteristischen Grenzen in IMR**

In Abschnitt 14.1 wurde die Theorie der charakteristischen Grenzen vereinfacht für skalare Modelle der Auswertung dargestellt. Das Modell der Auswertung für QUANTOM ist jedoch vektorwertig und beinhaltet direkt eine Monte-Carlo-Methode zur Fortpflanzung der Unsicherheiten. Dies ergibt eine WDF und keinen skalaren Wert. Daher werden im Rahmen der Auswertung für QUANTOM mit IMR Erkennungs- und Nachweisgrenzen ebenfalls mittels einer Monte-Carlo Methode gemäß DIN EN ISO 11929-2 berechnet. Das Modell der Auswertung zur Bestimmung der Elementmassenverteilung wird iterativ gelöst. Die Berechnung der charakteristischen Grenzen folgt dem Verfahren der Massenrekonstruktion. Wenn das Konvergenzkriterium für alle Gamma-Linien erfüllt ist, schließt sich in IMR die Berechnung der charakteristischen Grenzen an. Zunächst wird die Erkennungsgrenze bestimmt. Die Gleichungen zur Massenrekonstruktion werden mit der Monte-Carlo-Methode gelöst. Die Nachweisgrenze wird darauf aufbauend als Ergebnis eines iterativen numerischen Ansatzes mit derselben Methode erhalten. Im Folgenden werden die dafür implementierten Algorithmen im Detail dargestellt.

- **Algorithmen für die charakteristischen Grenzen**

Die Unsicherheit wird als Funktion des wahren Wertes der Messgröße definiert, um die charakteristischen Grenzen numerisch zu berechnen. Die Messgröße ergibt sich aus der Netto-Peakfläche P_N . Die Netto-Peakfläche kann durch Subtraktion des Untergrundwertes von der Gesamtfläche dargestellt werden: $P_N = T_N - B_N$. Dann wird die Standardunsicherheit, die mit dem primären Messergebnis der Nettozählrate P_R verbunden ist, als Quadratwurzel berechnet:

$$u(P_R) = \sqrt{u^2(T_R) + u^2(B_R)} = \sqrt{\frac{P_N}{t} + 2 \frac{B_N}{t}}.$$

Für den Fall der Berechnung der Erkennungsgrenze wird die Messgröße P_N auf Null gesetzt, da angenommen wird, dass der physikalische Effekt nicht vorhanden ist. Die sich daraus ergebende Gesamtmassenverteilung für die entsprechende Gamma-Linie liefert dann die Erkennungsgrenze als das obere 95 %-Quantil der Verteilung. Das Berechnungsverfahren für die Erkennungsgrenze wird in Tabelle 12 zusammengefasst.

Tabelle 12: Zusammenfassung des Berechnungsverfahrens für die Erkennungsgrenze einer Gamma-Linie im Rahmen der QUANTOM Auswertung.

Algorithmus 1: Algorithmus zur Ermittlung der Erkennungsgrenze	
	Input: Messparameter (Neutronenflüsse, Photopeak-Effizienzen, Elementmassenverteilung), die zuletzt in der Massenrekonstruktion verwendet wurden
	Ausgabe: Berechnung der Erkennungsgrenze für eine Gamma-Linie
1	Aufstellen des Modells der Auswertung (lineares Gleichungssystem) als $Y = G(X_1, \dots, X_m)$.
2	Vektor der Zählraten in Gleichung (29) auf Null setzen ($P_N = 0$).
3	Massenrekonstruktion für das entsprechende Gamma-Linie unter Verwendung der aktuellen Daten durch durchführen, indem Gleichung (13) mittels Monte-Carlo Methode gelöst wird. Ergibt die WDF für das Element l $f_l(y > y^* \tilde{y} = 0)$.
4	Der Wert der Erkennungsgrenze ist das 95%-Quantil der resultierenden Massenverteilung, $P(y > y^* \tilde{y} = 0) = \alpha$.

Anschließend wird der Wert der Erkennungsgrenze zur Berechnung der Nachweisgrenze in einem iterativen Verfahren wie folgt verwendet:

$$y_{i+1}^{\#} = y^* + k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}(y_i^{\#}),$$

mit dem Anfangswert $y_0^{\#} = 2y^*$ für $i = 0, 1, \dots$ [46]. Zu beachten ist, dass dadurch Nachweisgrenzen für die Gesamt-Elementmasse im Fass bestimmt werden. Der Wert der Nachweisgrenze in Iteration $i + 1$, $y_{i+1}^{\#}$, wird als Erwartungswert der resultierenden WDF bestimmt. In jeder Iteration wird demnach auf Grundlage der aktuellen Gesamtmasse ein Zählratenvektor gebildet, der sich gemäß dem Modell der Auswertung aus dieser Elementmassenverteilung ergibt. Für die räumliche Verteilung der Gesamtmasse ist dabei eine Annahme zu treffen. Um konservative Nachweisgrenzen zu bestimmen wird durchgängig angenommen, dass sich die Masse in den innersten Radialsektoren des untersten Höhensegmentes konzentriert. Das allgemeine ist im Folgenden im Pseudocode beschrieben (siehe Tabelle 13). Nachdem das Konvergenzkriterium erfüllt ist, wird die resultierende Verteilung verschoben, bis y_{low} gleich y^* ist. Dieser Schritt wird durchgeführt, weil das Modell der Auswertung aufgrund der eingebauten Nicht-negativität des Messergebnisses nicht erwartungstreu ist.

Tabelle 13: Zusammenfassung des iterativen Verfahrens für die Berechnung der Nachweisgrenze einer Gamma-Linie im Rahmen der QUANTOM Auswertung.

Algorithmus 2: Algorithmus zur Berechnung der Nachweisgrenze	
	Input: die für die Berechnung der Erkennungsgrenze verwendeten Messdaten, der Wert der Erkennungsgrenze y^* , der Wert der Nachweisgrenze $y_i^{\#}$ aus der vorherigen Iteration für $i > 0$
	Ausgabe: (konservative) Nachweisgrenze der Gamma-Linie
1	Aufstellen des Modells der Auswertung (lineares Gleichungssystem) als $Y = G(X_1, \dots, X_m)$.
2	Wenn es sich um die erste Iteration handelt, wird $y_0^{\#} = 2y^*$ initialisiert, andernfalls $y_{i+1}^{\#} = y^* + k_{1-\beta} y_i^{\#}$ für $i > 0$.
3	Verteilen Sie den aktualisierten Wert $y_i^{\#}$ als Gesamtmasse des Elements auf das Volumen der innersten Sektoren im untersten Höhensegment. Daraus ergibt sich D_f , das in der Vorwärtsberechnung verwendet wird.
4	Vorwärtsberechnung für den Zählratenvektor: $P_f = A_f D_f$.

5	Skalierung von P_f bzgl. Messzeiten.
6	Massenrekonstruktion mit den aktuellen Daten, indem Gleichung (13) gelöst wird. Ergibt die WDF für das Element l $f_l(y > y^* \tilde{y} = y^*)$.
7	Wenn $i > 0$, relative Änderung zwischen aufeinanderfolgenden Iterationen über Gleichung-(6) berechnen.
8	Ermittlung des Erwartungswerts der resultierenden Massenverteilung, $y_{expected} = \mu_{DL}$.
9	Berechnung des Werts am unteren Rand der Verteilung, y_{low} , als 5%-Quantil der resultierenden Verteilung.
10	Überprüfung des Konvergenzkriteriums. Wenn sie erfüllt sind, <ul style="list-style-type: none"> • Differenz zwischen y_{low} und y^*. Dies führt zu einer Verschiebung aufgrund der Unsicherheiten. • Aktualisierung der resultierende Massenverteilung, indem die erhaltene Verschiebung vom Ergebnis der ursprünglichen Masse abgezogen wird.
11	Beenden der Berechnung, wenn das Konvergenzkriterium erfüllt ist oder die Anzahl der Iterationen 10 überschreitet.
12	Nachweisgrenze $y^\#$, ist der Erwartungswert der resultierenden Massenverteilung (aktualisiert durch die Verschiebung).

• **Konvergenzkriterium für die Berechnung der Nachweisgrenze**

Da die Nachweisgrenze iterativ berechnet wird, muss der Prozess in geeigneter Weise beendet werden. Als Abbruchkriterium wird hier

$$\Delta_{DL} = \frac{|y_{i+1}^\# - y_i^\#|}{y_{i+1}^\#} \leq \varepsilon$$

verwendet, in Anlehnung an das Kriterium, das bei der Massenrekonstruktion zum Einsatz kommt. Dieses Kriterium liefert die relative Änderung zwischen aufeinanderfolgenden Iterationen. Der Standardwert für die Toleranz, ε , ist auf 0,01 eingestellt. Wenn diese Bedingung erfüllt ist, wird die Iteration abgebrochen und die Ergebnisse werden ausgegeben.

15. AP15: Datenbank

Im Fördervorhaben wurde ein Datenbanksystem entwickelt, um die wesentlichen Informationen bezüglich einer Messkampagne (Spektren, Messprotokolle, Ergebnisse der Auswertung) zu verwalten. Die Entwicklung dieser Datenbank war im ursprünglichen Fördervorhaben nicht eingeplant und wurde aufgrund der Notwendigkeit von Framatome entwickelt. Das Design der Datenbank sowie die genaue Anbindung innerhalb der Gesamtarchitektur der QUANTOM Messanlage wird hauptsächlich bestimmt werden vom geplanten Serviceangebot von Framatome mit der QUANTOM Messanlage. Die Ausgestaltung dieser Services bestimmt z. B. welche Daten zusätzlich zu den Messdaten erhoben und gespeichert werden müssen und welche Daten auf Kundenseite auf welche Art und Weise eingebunden werden sollen. Weiterhin ergibt sich daraus der Umfang und die Art der Daten, die an den Kunden nach Abschluss der Messung übermittelt werden. Die interne Architektur dieser Datenbank, die softwaretechnische Umsetzung sowie die Hardwareanforderungen und hardwaretechnische Realisierung ergeben sich aus der Art und dem Umfang der erhobenen Daten sowie weiteren Anforderungen wie Datensicherheit, Lokalität (physischer Speicherort) oder Besitzrechten an den Daten. Die Datenbank kann auch über eine direkte Schnittstelle mit den gängigen Abfallmanagementsystemen (AVK, ReVK, KADABRA) verbunden werden. Alternativ geschieht ein Einlesen der entsprechenden Daten sowie die Rückgabe der Messergebnisse und zusätzlicher Daten über die Software von Framatome.

15.1. Einleitung

Für die Quantum-Datenbank wurde als Ansatz eine relationale Datenbank mit JSON-Unterstützung gewählt. Somit können die Vorteile einer klassischen relationalen Datenbank mit den Vorteilen einer NoSQL-Datenbank gemeinsam genutzt werden. NoSQL findet besonders dort Anwendung, wo große Datenmengen mit hoher Performance gespeichert und abgefragt werden müssen. Dies ist in dieser Anwendung insbesondere für die Auswertung der Messergebnisse zu erwarten. Des Weiteren können, falls zusätzliche Messergebnisse generiert werden, diese im JSON-Array einfach ergänzt werden, ohne Veränderungen an den Datenstrukturen vornehmen zu müssen. Hierdurch entsteht eine zusätzliche Flexibilität. Für den gewählten Ansatz erscheint MS SQL-Server 2016 als geeignet.

15.2. Systemvoraussetzungen

Als Datenbanksystem wird ein aktueller MS SQL-Server vorgesehen (mind. MS SQL-Server 2016). Für die Verwendung von MS SQL-Server 2016 werden folgende Systemvoraussetzungen empfohlen:

- Betriebssystem: Windows 10 Professional oder Windows Server 2016 Standard
- Prozessor: 64bit mind. 2GHz – 8 Cores mit Hauptspeicher: mind. 16GB sowie Festplatte: mind. 200GB, partitioniert in jeweils 1/3 für:
 - C: Betriebssystem und SQL-Server
 - D: SQL-Server Daten
 - E: SQL-Server LogFiles und Backups

Empfehlung bezüglich SQL-Server Editionen:

- Hausintern für die Entwicklung kann die Developer-Edition verwendet werden. Sie besitzt den vollen Funktionsumfang und ist kostenfrei.
- Für den produktiven Einsatz vor Ort kann die Standard-Edition verwendet werden. Diese Version muss kostenpflichtig lizenziert werden. Die Kosten liegen lt. unserer hausinternen IT-Logistik-Abteilung aktuell bei 633,42 € plus 10% jährlicher Wartungsgebühr.

15.3. Datenbank-Design

• Daten-Schemen

Ein Schema ist ein eindeutiger Namensraum um die Trennung, Verwaltung und den Besitz von Datenbankobjekten zu erleichtern. Es entfernt die enge Kopplung von Datenbankobjekten und Eigentümern um die Sicherheitsverwaltung von Datenbankobjekten zu verbessern. Da die Quantum-Datenbank von mehreren Fakultäten verwendet wird, ist es naheliegend, die Daten entsprechend der Zuständigkeitsbereiche zu trennen. Somit wurden folgende Schemen angelegt:

Schema	Verwendung
fra	Scope: Framatome GmbH für Kampagnen- und Fassdaten mit den dazugehörigen Zugriffsobjekten
aint_control	Scope: AiNT-Steuerungssoftware für Messdaten mit den dazugehörigen Zugriffsobjekten
aint_analysis	Scope: AiNT-Auswertesoftware für Auswertungen mit den dazugehörigen Zugriffsobjekten
dbo	Scope: allgemein für Fehlerbehandlung und allgemeine Funktionen

• Rechte- und Datenzugriffskonzept

Jedes Datenbankobjekt benötigt eine eindeutige Zuständigkeit. Es ist zwar vorgesehen, dass Jeder überall Lesen darf, Änderungen an Daten dürfen aber nur im eigenen Scope durchgeführt werden. Um dies effizient gewährleisten zu können, wurden entsprechende Rollen angelegt und diese mit den notwendigen Rechten versehen. Den Rollen können beliebig viele User zugeordnet werden, zu denen wiederum Logins gehören. Für die Anmeldung am SQL-Server wurde der „mixed mode“ aktiviert, d.h. es kann sich primär per Windows-Authentication angemeldet werden. Ist Windows-Authentication nicht möglich, kann mit SQL-Server Logins agiert werden. Folgende Rollen wurden definiert:

Rolle	Berechtigung
r-fra-user	Select: auf alle Objekte Execute: auf alle stored Procedures mit nur lesendem Zugriff Execute: auf alle stored Procedures im Schema fra (für Datenänderungen)
r-aint-control	Select: auf alle Objekte Execute: auf alle stored Procedures mit nur lesendem Zugriff Execute: auf alle stored Procedures im Schema aint-control (für Datenänderungen)
r-aint-analysis	Select: auf alle Objekte Execute: auf alle stored Procedures mit nur lesendem Zugriff Execute: auf alle stored Procedures im Schema aint-analysis (für Datenänderungen)

Für den Datenzugriff wurden stored Procedures implementiert. Nur hierüber soll der Datenzugriff inklusive der Datenänderung erfolgen. Darüber hinaus kann in den Tabellen trotzdem gelesen werden, um spezielle Auswertungen zuzulassen, die durch die stored Procedures nicht abgedeckt sind. Vorteile von stored Procedures:

- Datenlogik und Businesslogik können gekapselt werden
- Anwender müssen nichts über die zugrunde liegenden Datenstrukturen wissen
- Verhinderung von Ad-hoc-Abfragen und Datenänderungen (ob beabsichtigt oder unbeabsichtigt)
- Schutz vor SQL Injection durch parametrisierte SQL-Befehlen
- Individuelle Fehlerbehandlung und Protokollierung

Änderungen an Datenstrukturen sollen nur durch spezielle Benutzer erfolgen dürfen, denen das dbo-Recht zugeordnet wurde.

- **Beschreibung des Datenmodells**
 - **Allgemeines**

Das Datenmodell wurde gemäß den zur Verfügung gestellten Eingangsdaten mit einem Datenmodellierungstool (ERWin) erstellt und automatisch generiert. Die referentielle Integrität wurde dabei gewährleistet. D.h. die Integrität zwischen Fremd- und Primärschlüssel inklusive Update- und Löschweitergaben wurden datenbankseitig implementiert.

Regel	Bedeutung
D:R	Delete restricted: Ist ein Primärschlüssel (PK) noch als Fremdschlüssel (FK) in einer referenzierten Tabelle enthalten, wird die Löschung abgewiesen. Bsp.: Wird ein Fass gelöscht, für die schon eine Messung durchgeführt wurde, so wird die Löschung abgewiesen.
D:C	Delete cascade: Wird ein Satz in der Primärtabelle gelöscht, so werden alle Sätze in den nachgelagerten Tabellen ebenfalls gelöscht. Bsp.: Wird eine Messung gelöscht, so werden auch die dazugehörigen Auswertungen gelöscht.
U:C	Update cascade: Wird ein Primärschlüssel geändert, werden alle referenzierten Werte in den nachgelagerten Tabellen ebenfalls geändert. Bsp.: Wird eine DrumId geändert, so wird sie automatisch in den Messungen geändert.

▪ Datenbankzugriffe

Für den Datenzugriff wurden stored Procedures manuell implementiert. Die Notation ist jeweils identisch:

stored Procedure	Zweck
set<TabellenName>()	Einfügen oder Ändern von Daten
get<TabellenName>()	Ausgabe EINES Datensatzes einer Tabelle basierend auf den übergebenen Parameter(n)
get<TabellenName>s()	Ausgabe ALLER Datensätze einer Tabelle
unset<TabellenName>()	Leeren einzelner Datenfelder
unlock<TabellenName>()	Rücksetzen des valid-Flags
del<TabellenName>()	Löschen eines Satzes

Die Datenbankstruktur ist Abbildung 56 dargestellt. Eine ausführliche Beschreibung der Datenbank ist (Beschreibung der Sichten und Anwendungsbeispiele (stored procedures)) in [26] zu finden. Die neue und erweiterte Datenbank erlaubt die Speicherung und Benutzung von zusätzlichen Eingangsdaten (z.B. initiale Zusammensetzung einer Matrice), die die Auswerteschritte bei der Auswertung vereinfachen. Die neue Datenbank wurde vor Ort installiert.

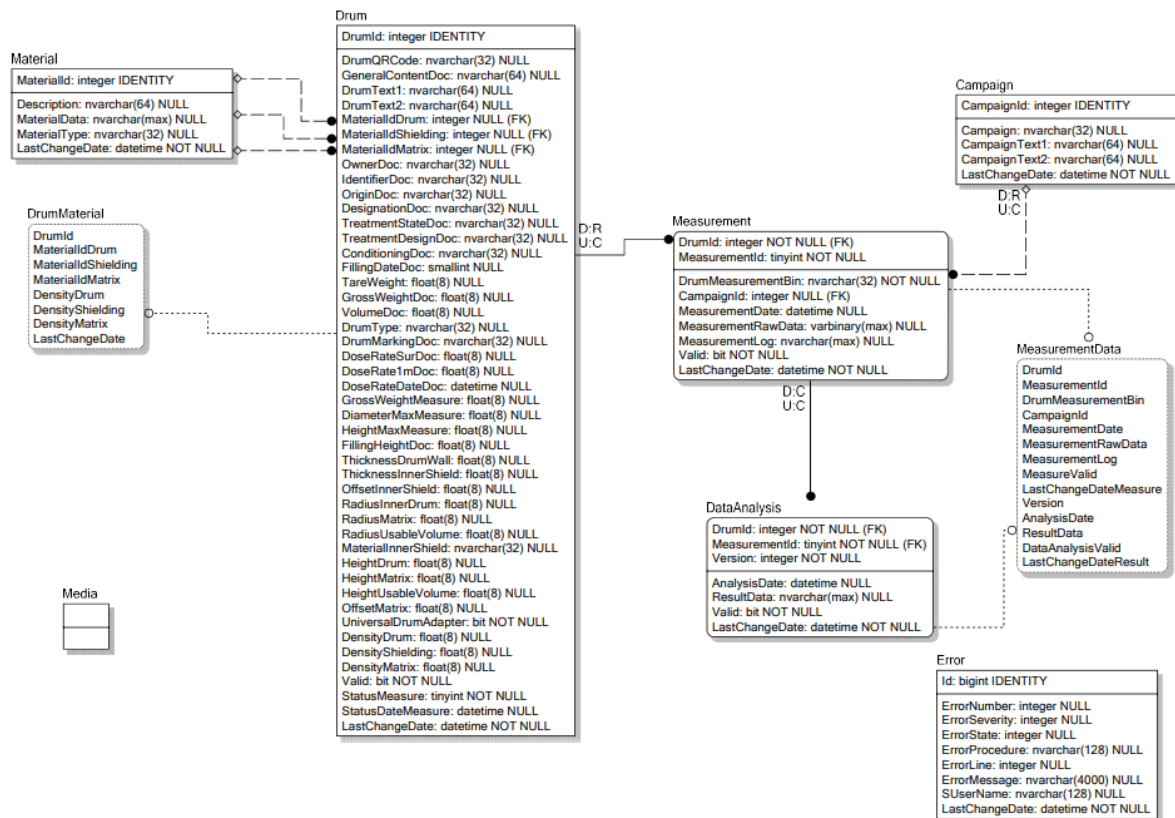


Abbildung 56: Datenbankstruktur.

Bekannt gewordener externer Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens

Keine. Leider forschen international nur wenige Hochschulen und Forschungsinstitute in der PGNA. Einige Unternehmen, wie beispielsweise Schlumberger Ltd. oder Scantech International Pty Ltd., investieren Millionenbeträge [€] für F&E in die Technologie für spezifische Anwendungsfälle, wie die Exploration von Öl- und Erdgaslagerstätten oder die Analyse von Schüttgütern auf Förderbändern. Jedoch veröffentlichen diese Unternehmen keine Ergebnisse und sind extrem auf IP-Schutz bedacht. Kontakt zu Entwicklern von diesen Unternehmen erfolgt nur auf internationalen Konferenzen und Fachmessen. Hier findet ein konstruktiver Austausch statt.

Veröffentlichungen und Presse-Mitteilungen

1. L. Coquard et al. "Non-destructive material characterization of radioactive waste packages with QUANTOM", International Conference on Decommissioning and waste management, IAEA, Wien, 2023.
2. L. Coquard et al. "Non-destructive material characterization of radioactive waste packages with QUANTOM", Konferenz Kontec 2023, Dresden, 2023.
3. L. Coquard et al. „Non-destructive verification of materials in waste packages using QUANTOM®, EPJ Nuclear Sci. Technol. 9, 5 (2023) <https://doi.org/10.1051/epjn/2022043>
<https://www.epj-n.org/articles/epjn/abs/2023/01/epjn220043/epjn220043.html>
4. L. Coquard, A. Havenith „Zerstörungsfreie Plausibilitätsprüfung der stofflichen Beschreibung radioaktiver Abfälle mittels QUANTOM“, atw, International Journal for Nuclear Power, Ausgabe 1, 2023

Nachfolgend ist der Link zur Pressemitteilung der Europäischen Kommission aufgeführt:

5. https://ec.europa.eu/info/news/nuclear-innovation-prize-seven-applications-awarded-2022-may-31_en

Presse Mitteilung Framatome:

6. <https://www.framatome.com/medias/framatome-receives-nuclear-innovation-prize-from-european-commission-euradwaste-2022/>

Presse Mitteilung GRS:

7. <https://www.grs.de/de/aktuelles/grs-projekttraeger-europaeische-kommission-zeichnet-zwei-forka-projekte-aus>
8. Dr. Laurent Coquard, Dr. Andreas Havenith, et al.: Zerstörungsfreie stoffliche Beschreibung und Plausibilitätsprüfung radioaktiver Abfälle, Posterbeitrag, Konferenz Kerntechnik 2022, 21.-22. Juni 2022, Leipzig.
9. Dr. Laurent Coquard, Dr. Andreas Havenith, et al.: Non-destructive Material Characterization of Radioactive Waste Packages with QUANTOM®, WM2022 Conference, March 6 – 10, 2022, Phoenix, Arizona, USA (Paper + Vortrag): Non-destructive Material Characterization of Waste Packages wi... (kit.edu)
10. Coquard et al.: "Non-destructive material characterization of radioactive waste packages with QUANTOM®", Konferenz der IAEA: "Radioactive Waste Management for a sustainable future", Wien, Nov. 2021, Non-Destructive Material Characterization of Radioactive Wast. | INIS (iaea.org)

-
11. Coquard et al.: "Zerstörungsfreie stoffliche Beschreibung und Plausibilitätsprüfung radioaktiver Abfälle mittels QUANTOM®", Konferenz KONTEC, Dresden, 2021.
 12. Coquard et al: "QUANTOM - Non-destructive material characterization of radioactive waste", ICOND, Aachen, 2021. (Vortrag, Book of Abstract)
 13. Havenith et al.: „Stoffliche Beschreibung und Plausibilitätsprüfung radioaktiver Abfälle mittels QUANTOM“, Fachverband für Strahlenschutz, Jahrestagung 2021, Aachen, 2021.
 14. Video: <https://www.framatome.com/solutions-portfolio/portfolio/product?product=A1688>
L. Coquard, A. Havenith, et al.: Non-destructive Material Characterization of Radioactive Waste Packages with QUANTOM®, ICOND, Digital, 24-26.11.2020.
 15. L. Coquard, A. Havenith, et al.: Non-destructive Material Characterization of Radioactive Waste Packages with QUANTOM®, WMS 2020 Conference, Phoenix, Arizona, USA, March 8-12, 2020.
 16. Internationale Pressemitteilung von Framatome: <http://www.framatome.com/EN/businessnews-1456/framatome-entwickelt-mobile-technologie-zur-zerstrungsfreien-analyse-von-radioaktiven-abfällen.html>, 18.12.2018.
 17. L. Coquard, A. Havenith, et al.: „Stoffliche Beschreibung und Plausibilitätsprüfung radioaktiver Abfälle mittels QUANTOM“, KONTEC 2019, Dresden, 27. - 29. März 2019.
 18. A. Havenith, L. Coquard et al.: Projektsteckbrief zum BMBF-Förderprojekt, <http://www.framatome.com/businessnews/liblocal/docs/Presse/QUANTOM-GER-201811.pdf>, 22.11.2018.
 19. A. Havenith, L. Coquard et al.: "QUANTOM - Non-destructive scanning of waste packages for material description and plausibility check", AMNT 2019, Berlin, 07. - 08. Mai 2019.
 20. A. Havenith et al.: QUANTOM®-Non-destructive scanning of radioactive waste packages for material characterization, ANIMMA 2019, Portorož (Slovenien), 17. - 21. Juni 2019.
 21. O. Schumann et al.: QUANTOM® - Optimization of the online neutron flux measurement system, ANIMMA 2019, Portorož (Slovenien), 17. - 21. Juni 2019.

Referenzen

- [1] Schlumberger Ltd.: A New Capture and Inelastic Spectroscopy Toll Takes Geochemical Logging to the Next Level, SPWLA 53rd Annual Logging Symposium, June 16-20, 2012.
- [2] Hendrik Willen Baas: Neutron Activation Analysis of Inhomogeneous Large Samples, Technische Universität Delft, 11. Oktober 2004.
- [3] J. P. Holloway, H. Akkurt, The fixed point formulation for large sample PGNAA – Part 1: theory, Nucl. Inst. Meth. In Phys. Res. A, 522, pp. 529 – 544 (2004).
- [4] H. Akkurt, J. P. Holloway, L. E. Smith, The fixed point formulation for large sample PGNAA – Part 2: experimental demonstration, Nucl. Inst. Meth. In Phys. Res. A, 522, pp. 545 – 557 (2004).
- [5] Kettler, J., Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfälle, Dissertation, Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt Band 82, 978-3-89336-665, 2010.
- [6] Havenith, A., Stoffliche Charakterisierung radioaktiver Abfallprodukte durch ein Multi-Element-Analyseverfahren basierend auf der instrumentellen Neutronen-Aktivierungs-Analyse, Dissertation, Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt Band 248, ISBN 978-3-95806-033-3, 2014.
- [7] Pressemitteilung der BGE vom 08. März 2018.
<https://www.bge.de/de/meldungen/2018/3/betrifft-konrad-fertigstellung-konrad/>
- [8] Schlumberger Ltd.: A New Capture and Inelastic Spectroscopy Toll Takes Geochemical Logging to the Next Level, SPWLA 53rd Annual Logging Symposium, June 16-20, 2012.
- [9] Schlumberger Ltd.: Litho Scanner High-Definition Spectroscopy, http://www.slb.com/services/characterization/wireline_open_hole/scanner_rock_fluid_character/litho_scanner.aspx, Download spectroscopy workflow.
- [10] Schlumberger Ltd.: Litho Scanner High-Definition Spectroscopy, http://www.slb.com/services/characterization/wireline_open_hole/scanner_rock_fluid_character/litho_scanner.aspx, Download spectroscopy workflow.
- [11] Thermo Fisher Scientific (Darrell Leetham): Online Stockpile Analysis, Reprinted from January 2008, World Cement.
- [12] Thermo Electron Corporation (R. Woodward, B. Chuang, K. Gordon, D. Milam) Arch Coal (M. Hardesty): Automated Coal Blending with Two Control Parameters at One of Arch Coal's West Virginia Mining Complexes, International On-Line Coal Analyzer Technical Conference St. Louis, Missouri, 8.-10. November 2004.
- [13] Naqvi A.A., Nagadi M.M., Al-Amoudi O.S.B: Corrosion Study of Concrete Using PGNAA Technique, Materials Science Forum (Volumes 480 - 481), März 2005.
- [14] Naqvi A.A.: Non-destructive analysis of chlorine in fly ash cement concrete, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Mai 2009.

-
- [15] Naqvi A.A., Nagadi M.M., Al-Amoudi O.S.B: Non-destructive evaluation of concrete samples using PGNA technique, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 271, No.1 (2007) 151–154, April 2006.
- [16] IAEA: Handbook on Nuclear Data for Borehole Logging and Mineral Analysis, Vienna 1993.
- [17] IAEA: Database of Prompt Gamma Rays from Slow Neutron Capture for Elemental Analysis, IAEA-TECDOC, Vienna 2004.
- [18] IAEA: Database of Prompt Gamma Rays from Slow Neutron Capture for Elemental Analysis, IAEA Library Cataloguing in Publication Data, ISBN 92–0–101306–X, Vienna January 2007.
- [19] Original Betriebsanleitung der stationären Messanlage QUANTOM 1.0, FGF_D02-ARV-01-207-794, Rev. A.
- [20] Neutron Generator Model DD-109.4 Operation Manual (QUANTOM_ADL_FRA_4.3.4), Adelphi Technology Inc., Revision 1.3, Sept. 2022.
- [21] Germanium Detectors 9231358G User's Manual, Mirion Technologies, 2017.
- [22] Operation and maintenance manual Centronic fission chambers, M. Hodgson, PR8009, 18/08/2020.
- [23] E17085-ICTA-G-030-B-Anlage 1 – Meldeliste Liste aller Fehler und Warnmeldungen
- [24] Technische Beschreibung der Handhabung von radioaktiven Abfallfässern im Technikum von AINT mittels der „stationären“ Fassmessanlage, L. Coquard, QUANTOM-FRA-ANT-DOC-0001, Rev. A, 04.06.2020.
- [25] Annahmebedingungen radioaktiver Abfallfässer im Technikum der Firma AINT GmbH für die Messanlage Quantum, L. Coquard, Quantum-FRA-XXX-TEC-0002, 01.12.2020.
- [26] Quantum – Datenbank, Quantum-FRA-ANT-TEC-0003, H. Kämpf, Rev. D, 01.09.2022.
- [27] P. Brantley, E. Larsen, The simplified P 3 approximation. Nuclear Science and Engineering 134(1), p.1-21, 2000.
- [28] J. Duderstadt, L. Hamilton, Nuclear Reactor Analysis. John Wiley and Sons, New York, 1976.
- [29] P. Eilers, H. Boelens, Baseline_Correction_with_Asymmetric_Least_Squares_Smoothing, https://www.researchgate.net/publication/228961729_Baseline_Correction_with_Asymmetric_Least_Squares_Smoothing, 2005.
- [30] https://docs.scipy.org/doc/scipy/reference/generated/scipy.signal.savgol_filter.html
- [31] <https://docs.scipy.org/doc/scipy/reference/generated/scipy.stats.poisson.html>
- [32] Szentmiklósi, László, Fitting special peak shapes of prompt gamma spectra. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, DOI: 10.1007/s10967-017-5589-z, (2017).
- [33] https://docs.scipy.org/doc/scipy/reference/generated/scipy.optimize.least_squares.html
- [34] <https://docs.scipy.org/doc/scipy/reference/generated/scipy.ndimage.convolve.html>
- [35] <https://docs.scipy.org/doc/scipy/reference/generated/scipy.signal.windows.hann.html#scipy.signal.windows.hann>
- [36] https://docs.scipy.org/doc/scipy/reference/generated/scipy.signal.find_peaks.html
- [37] G. Molnár (ed.), Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis, ISBN: 1-4020-1304-3, Kluwer Academic Publishers (2004).

-
- [38] D. A. Brown et al., „ENDF/B-VIII.0: The 8 th Major Release of the Nuclear Reaction Data Library with CIELO-project Cross Sections, New Standards and Thermal Scattering Data“, Nuclear Data Sheets, Jg. 148, S. 1–142, 2018.
- [39] Los Alamos Scientific Laboratory. Group X-6. MCNP : a General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport. Los Alamos, N.M. [Springfield, Va.]: Dept. of Energy, Los Alamos Scientific Laboratory; 1979.
- [40] K. Gméling, B. Maróti, I. Harsányi, L. Szentmiklósi, Analysis of 11 Reference Samples by PGAA and NAA Methods, Center for Energy Research, Nuclear Analysis and Radiography Department, Budapest, Dezember 2019.
- [41] A. Jesser, K. Krycki, M. Frank, Partial Cross-Section Calculations for PGNAA Based on a Deterministic Neutron Transport Solver, Nuclear Technology, Vol. 208 (7), 2022, DOI: 10.1080/00295450.2021.2016018.
- [42] H. Zhu, R. H. Byrd, J. Nocedal, Algorithm 778: L-BFGS-B, FORTRAN routines for large scale bound constrained optimization, ACM Transactions on Mathematical Software, Vol. 23, pp. 550-560, 1997.
- [43] Paul K. Romano, Nicholas E. Horelik, Bryan R. Herman, Adam G. Nelson, Benoit Forget, and Kord Smith, OpenMC: A State-of-the-Art Monte Carlo Code for Research and Development, Ann. Nucl. Energy, 82, 90–97 (2015).
- [44] R. S. Witte, J. S. Witte, Statistics, ISBN: 9781119354515, 2017.
- [45] International Organization for Standardization (2010) ISO 11929 determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the confidence interval) for measurements of ionizing radiation-fundamentals and application, Geneva.
- [46] Weise, K., Hübel, K., Rose, E., Schläger, M., Schrammel, D., Täschner, M., Michel, R., Bayesian decision threshold, detection limit and confidence limits in ionizing-radiation measurement, Radiation Protection Dosimetry 121(1), 2006, 52–63.
- [47] M. Wangnick, A. Havenith: CAD-Zeichnungen der Neutronengenerator-Kammer. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-TEC-0001, 2018.
- [48] M. Wangnick, A. Havenith: Aufbau der Messanlage QUANTOM. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-DOC-0003, 2018.
- [49] M. Rother, A. Havenith: Abschirmberechnungen für die Messanlage QUANTOM. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-DOC-0001, 2018.
- [50] K. Krycki, F. Simons: Top-Level Softwarearchitektur für das QUANTOM-Projekt. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-DOC-0002, 2018.
- [51] K. Krycki, F. Simons: Softwareschnittstelle für die Anlagesteuerung. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-TEC-0003, 2019.
- [52] C. Helmes, A. Jesser: Berechnung der Multigruppen-Wirkungsquerschnitte für den SP3-Löser. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-TEC-0006, 2019.
- [53] A. Jesser, C. Helmes: Upscattering im SP3-Löser. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-TEC-0010, 2019.
- [54] B. Fu, B. Hansmann: Charakterisierung und Validierung der QUANTOM-Detektoren. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-TEC-0012, 2020.
-

-
- [55] B. Fu, M. Rother: Kalibrierung Spaltkammer anhand Neutronenfolienaktivierung. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-TEC-0022, 2021.
- [56] K. Krycki: Massenrekonstruktion für die Auswertung der QUANTOM-Messdaten. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-DOC-0011, 2020.
- [57] G. Jäkel, K. Krycki: Automatische Spektrenauswertung. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-TEC-0024, 2022.
- [58] K. Krycki, B. Fu: Validierungskampagne mit homogenen und inhomogenen Referenzfässern. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-DOC-0012, 2023.
- [59] G. Özden, F. Simons: Implementierung Auswertesoftware IMR. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-TEC-0026, 2023.
- [60] G. Özden, K. Krycki: Massenrekonstruktion und Berechnung der Nachweisgrenze. Interner Zwischenbericht: Quantum-ANT-FRA-TEC-0025, 2023.
- [61] O. Schumann, „Konzeption der Online-Neutronenflussmessung für das Quantum-Projekt (Quantom-FNT-ANT_FRA-DOC-0002),“ Euskirchen, 29.08.2022.
- [62] O. J. Schumann und T. Köble, „Konzeption zur Kalibrierung der ^3He -Neutronendetektoren (Quantom-FNT-ANT_FRA-DOC-0004),“ Euskirchen, 12. Juli 2019.
- [63] O. Schumann, „Softwarearchitektur der Online-Neutronenflussmessung für das QUANTOM Projekt (Quantom-FNT-ANT-DOC-0003),“ Euskirchen, 21.01.2019.
- [64] O. Schumann, „Kalibrierung der ^3He -Neutronendetektoren (Quantom-FNT-ANT_FRA-DOC-0005),“ Euskirchen, 27.01.2020.
- [65] O. Schumann, „Kalibrierung der ^3He -Neutronendetektoren - Update (Quantom-FNT-ANT_FRA-DOC-0007),“ Euskirchen, 06.03.2020.
- [66] O. Schumann, „Totzeitkorrektur Online-Neutronenflussmessung (Quantom-FNT-ANT-DOC-0008),“ Euskirchen, 05.12.2022.
- [67] O. Schumann, C. Bornhöft, W. Berky, B. Fu und F. Reisenhofer, „Messung des Neutronenflusses mit Spaltkammern und Aktivierungsfolie (Quantom-FNT-ANT_FRA-DOC-0006),“ Euskirchen, 20.04.2020.