

# K E R N F O R S C H U N G S Z E N T R U M

## KARLSRUHE

Mai 1973

KFK 1771

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik Projekt Actiniden

Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Lagerstättenprospektion mit Hilfe von neutroneninduzierter Gammastrahlung

H. Würz, L. Buth

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H.

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H. KARLSRUHE

#### KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1771 PACT 31

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Projekt Actiniden

Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Lagerstättenprospektion mit Hilfe von neutroneninduzierter Gammastrahlung

H. Würz, L. Buth

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

## Zusammenfassung

Es werden Probleme untersucht, die sich aus der Anwendung der neutroneninduzierten Gammastrahlung zur in-situ Prospektion von Erzen ergeben. Behandelt wird die Bohrlochlagerstättenexploration am Beispiel der Wolframprospektion in Mittersill und die marine Manganknollen-Prospektion in der Tiefsee. Aus der Messung von Peakzählraten elementspezifischer Gammalinien sollen Aussagen über die Konzentration dieser Elemente gemacht werden. Diese Zuordnung kann rechnerisch erfolgen. Dazu wird die Gammaintensität in Abhängigkeit von der Matrixzusammensetzung berechnet. Aus dem Vergleich der dabei gewonnenen Eichkurven mit der gemessenen elementspezifischen Gammaintensität kann die Konzentration dieses Elements bestimmt werden.

Zunächst ist der Einfluß der Matrixzusammensetzung auf den thermischen und den epithermischen Neutronenfluß zu untersuchen. Die Neutronikrechnungen werden unter der Annahme einer homogenen Verteilung des nachzuweisenden Materials durchgeführt. Dabei werden die beiden Fälle, trockenes und moderierendes Bohrloch unterschieden. Im moderierenden Bohrloch wird eine hohe Gammaintensität erreicht und damit eine gute Nachweisempfindlichkeit. Der thermische und der epithermische Neutronenfluß sind dagegen nur im trockenen Bohrloch von der Matrixzusammensetzung, die man i.a. nicht kennt, abhängig.

Theoretical and experimental investigations of Ore Deposits by Neutroneninduced Gammaradiation

#### Abstract

Some theoretical problems arising from the application of neutron induced gamma rays in the field of in-situ exploration of natural minerals are investigated. The exploration of boreholedeposits is demonstrated for the example of the tungstenium deposits near Mittersill and for Manganese modules in the sea. The measured intensity of characteristic gammalines has to be related to the mineral concentration. This relation shall be done by calculation. Therefore the gammaintensity is calculated as a function of the matrix. The unknown concentration can then be determined by comparison of the calculated calibration curve with the measured gammaintensity.

The influence of the matrixcomposition on the thermal and the epithermal neutron flux has to be investigated. The neutronic calculations are done by assuming that the materials are homogeneously distributed. Two cases are considered, the dry and the moderating borehole. In the moderating borehole a high gammaintensity and therefore a good detection sensitivity is achieved. Conversely the thermal and the epithermal neutron flux are unambiguously dependent on the matrixcomposition only in the dry borehole.

## I. Einleitung

- II. Theoretische Grundlagen
  - II.1 Die Transportgleichung
  - II.2 Die numerische Behandlung des Neutronentransports
  - II.3 Die numerische Behandlung des Gammatransports
  - II.4 Der Gammatransport für den Sonderfall der Vernachlässigung des differentiellen Comptonstreuprozesses
- III. Parameteruntersuchungen zum Neutronen- und Gammatransport bei der Lagerstättenprospektion am Beispiel Mittersill
  - III.1 Das Sandhaufenmodellexperiment und Diskussion der gewonnenen Resultate
  - III.2 Neutronik bei der Wolfram-Prospektion in Mittersill
  - III.3 Gammaintensitäten bei der Wolfram-Prospektion
- IV. Parameteruntersuchungen zum Neutronen- und Gammatransport bei der Manganknollen-Prospektion
  - IV.1 Das Modellexperiment zur Manganknollen-Prospektion und Diskussion der gewonnenen Resultate
  - IV.2 Neutronik bei der maritimen Manganknollen-Prospektion
  - IV.3 Gammaintensitäten bei der Manganknollen-Prospektion
- V. Schlußfolgerungen, Zusammenfassung

## I. Einleitung

Nukleartechnische Methoden werden von wachsender Bedeutung für die zerstörungsfreie Analyse von Werkstoffen  $\underline{\sqrt{1}}$ , für die Entwicklung von Prospektionsmethoden zur Exploration von Erzlagerstätten  $\underline{\sqrt{2}}$  und in der Medizin zur Strahlentherapie  $\underline{\sqrt{3}}$  und für Diagnosezwecke  $\underline{\sqrt{4}}$ .

Der Begriff "Nukleartechnische Methoden" umfaßt dabei die Gebiete Neutronenradiographie  $\langle \bar{57} \rangle$ , Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) und die prompte (n $\gamma$ )-Methode. In der Neutronenradiographie werden Neutronen, ähnlich wie Röntgenstrahlen, zur Untersuchung der Strukturen verschiedener Stoffe verwendet. Dabei werden die unterschiedlichen Absorptionsquerschnitte der verschiedenen zu untersuchenden Materialien benutzt, um einen kollimierten Neutronenstrahl der Intensität I<sub>o</sub> durch Intensitätsmodulation entsprechend I<sub>o</sub>e<sup>- $\Sigma_{ad}$ </sup> zur Abbildung von Strukturen zu verwenden.

Die Neutronenaktivierungsanalyse und die prompte  $(n\gamma)$ -Methode werden seit der zunehmenden Produktion von Cf<sup>252</sup> und seiner Verwendung als neutronenemittierendes Material für Neutronenquellen für viele Untersuchungen verwendet  $\underline{\langle \vec{6} \rangle}$ . 1 g Cf<sup>252</sup> liefert durch Spontanspaltungsprozesse eine Neutronenintensität von 2,3 10<sup>12</sup> n/sec bei einer Halbwertszeit von 2,6 Jahren. Die Quellneutronen haben eine mittlere Energie  $\vec{E} = 1,9$  MeV. Dabei ist ein gemessenes Spaltspektrum zugrunde gelegt  $\underline{\langle \vec{2} \rangle}$ . Damit stehen intensive kompakte Neutronenquellen zur Verfügung.

Durch die Verwendung von Neutronen haben die nukleartechnischen Methoden gegenüber anderen denkbaren Methoden, wie z.B. die Röntgenfluoreszenzanalyse den Vorteil der großen Reichweite der schnellen Quellneutronen und der neutroneninduzierten prompten bzw. verzögerten Gammastrahlung. Damit ist die Durchleuchtung und Bestrahlung großer Volumbereiche möglich. Dies ermöglicht eine verläßliche und repräsentative Konzentrationsangabe des zu prospektierenden Elements. Inhomogenitäten in den Materialzusammensetzungen

Zum Druck eingereicht am 24.5.1973

haben damit einen geringeren Einfluß auf die Interpretation der Meßresultate. Zum anderen kann zur theoretischen Untersuchung der Neutronik des Problems auf die bewährte Theorie des Neutronentransports zurückgegriffen werden  $\langle \underline{8} \rangle$ . Da der Transport von Gammaquanten ebenfalls mit der Transportgleichung beschrieben werden kann  $\langle \underline{9} \rangle$ , ist eine theoretische Behandlung der Probleme möglich.

Die Anwendung der zur Berechnung des Neutronentransports (Neutronik) von Reaktoren geschaffenen Programmsysteme  $\langle 10 /$ bedarf im Einzelfall allerdings der experimentellen Überprüfung, da die Geometrien häufig kompliziert sind, da Aussagen nicht nur über die Ortsabhängigkeit von relativen Neutronenflüssen, sondern auch Aussagen über Flußabsolutwerte gemacht werden müssen und da thermische Neutronenverteilungen zu berechnen sind.

Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit untersuchten Probleme resultieren aus der Anwendung der (NAA)-Methode und der prompten (n $\gamma$ )-Methode zur Bestimmung des Gehalts an Erzen in Gesteinsschichten und der Bestimmung des Nickelgehalts von Manganknollen, wie sie auf dem Meeresboden gefunden werden  $\langle \bar{127} \rangle$ . Die Erzbestimmung in Gesteinsschichten wird für den Fall der Wolframprospektion in Mittersill behandelt. In beiden Fällen mißt man ein Gammaspektrum, dessen Linien charakteristisch sind für die Materialzusammensetzung des mit Neutronen durchstrahlten Volumenbereichs. Aus der Intensität der elementspezifischen Gammalinien kann man bei einer bekannten Neutronenverteilung Aussagen über die Konzentration dieses Elements gewinnen.

Die nachzuweisenden Materialien sind Absorbermaterialien, die thermische und unter Umständen auch epithermische Neutronen einfangen. Sie werden demnach die Ortsverteilung und die Intensität der thermischen und epithermischen Neutronen beeinflussen. Ziel der Arbeit ist deshalb unter anderem eine systematische Untersuchung der Einflüsse

- 2 -

verschiedener Parameter auf die Neutronenverteilung. Dabei zeigt es sich, daß die ortsabhängige Form der Neutronenverteilung (Profil) und die absolute Intensität des Flusses stark von der Wasserstoffteilchendichte und - wenn die nachzuweisenden Materialien einen Einfangquerschnitt von mehreren barn haben - von der Teilchendichte dieser Materialien abhängt. Dies hat eine unmittelbare Konsequenz für die Abhängigkeit der Intensität der elementspezifischen Gammaquanten von der Materialkonzentration, die zu bestimmen ist, und von der Gesteinsfeuchte, die gewöhnlich ebenfalls nicht bekannt ist.

## II. Theoretische Grundlagen und Rechenprogramme

## II.1 Die Transportgleichung

Zur Berechnung des stationären Transports von Teilchen in Materie ist die orts-, energie- und winkelabhängige Transportgleichung zu lösen. Sie lautet in integrodifferentieller Form:

$$\underline{\Omega} \text{grad } F(\underline{r}, \underline{E}, \underline{\Omega}) + \Sigma_{\underline{t}} (\underline{E}, \underline{r}) F(\underline{r}, \underline{E}, \underline{\Omega}) = S(\underline{r}, \underline{E}, \underline{\Omega})$$

$$II.1$$

$$+ \int \int \Sigma (\underline{E'} \rightarrow \underline{E}, \underline{\Omega'} \rightarrow \underline{\Omega}, r) F(\underline{r}, \underline{E}, \underline{\Omega}) d\underline{\Omega'} d\underline{E'}$$

$$\Omega' \underline{E'}$$

Dabei bedeuten

- F(r,E,Ω) orts-, energie- und winkelabhängiger Fluß
- $S(r,E,\Omega)$  vorgegebene orts-, energie- und winkelabhängige externe Quelle
- $\Sigma(E' \rightarrow E, \underline{\Omega}' \rightarrow \underline{\Omega}, \underline{r})$  doppelt-differentieller Streuquerschnitt, abhängig von dem Energieübertrag und der Flugrichtungsänderung des Teilchens beim Streuprozeß
- $\Sigma_{+}(E,\underline{r})$  totaler makroskopischer Wirkungsquerschnitt

- 3 -

Durch die Ortsabhängigkeit der Querschnitte wird eine Anordnung, die aus verschiedenen Materialschichten bestehen kann, berücksichtigt. Zur Vereinfachung wird im folgenden ein homogenes Medium angenommen. Zur numerischen Behandlung von Gleichung II.1 werden die folgenden vereinfachenden Annahmen gemacht:

- 1) die Ortsabhängigkeit von  $F(\underline{r}, \underline{E}, \underline{\Omega})$  ist in ein-, maximal zweidimensionaler Geometrie darstellbar.
- 2) Es sei Σ(E'→E,Ω'→Ω) = Σ(E'→E,cos θ<sub>O</sub>), d.h. der differentielle Streuquerschnitt ist nur vom Kosinus des Winkels θ<sub>O</sub> zwischen der Richtung des einfallenden und des gestreuten Teilchens abhängig.
- 3a)Bei der Behandlung von Neutronentransportproblemen: Isotrope Streuung, d.h.  $\Sigma(E' \rightarrow E, \cos \vartheta_0) = \frac{1}{4\pi} \Sigma_0(E' \rightarrow E)$  bzw. Anisotropie der Streuung bis zur 1. Ordnung (sogenannte Tr**an**sportkorrektur). Sie lautet in ihrer einfachsten Form:

$$\Sigma(E' \rightarrow E, \cos \vartheta_{O}) = \frac{1}{4\pi} \angle \Sigma_{O}(E' \rightarrow E) - \Sigma_{1}(E) \delta(E' - E) \angle \overline{A}$$

Dabei bedeuten

$$\Sigma_{O}(E' \rightarrow E) = \int_{l_{r_{ii}}} \Sigma(E' \rightarrow E, \cos \vartheta_{O}) d\Omega_{O}$$
  

$$\Sigma_{1}(E) = \int_{E'} dE' \int_{l_{r_{ii}}} \Sigma(E' \rightarrow E, \cos \vartheta_{O}) P_{1}(\cos \vartheta_{O}) d\Omega_{O} = \overline{\mu(E)} \Sigma_{O}(E)$$

 $P_1(\cos \vartheta_0) = \cos \vartheta_0$  Legendrepolynom vom Grad 1

In dieser Näherung wird die linear anisotrope Streuung als elastisch behandelt. 3b)Bei der Behandlung von Gammatransportproblemen: Streuung der Gammaquanten an freien Elektronen. Als differentieller Streuprozeß ist bei Gammatransportproblemen der Comptonstreuprozeß zu behandeln. Σ(E'->E,cos θ<sub>0</sub>) ist dann gegeben durch:

$$\Sigma(E' \rightarrow E, \cos \vartheta_{o}) = n_{el} \frac{d\Sigma}{d\Omega_{o}} \delta(1 - \cos \vartheta_{o} + \frac{E_{o}}{E'} - \frac{E_{o}}{E}) \frac{1}{E^{2}}$$
 II.2

mit  $E_0 = m_{el}c^2$  und  $n_{el}$  = Dichte der Elektronen. Die  $\delta$ -Funktion sorgt für die Erfüllung der Energie-Winkelbeziehung beim Comptonstreuprozeß.  $\frac{d\Sigma}{d\Omega_0}$  ist für freie Elektronen durch die Klein-Nishina-Formel gegeben:

$$\frac{d\Sigma}{d\Omega_{O}} = \frac{1}{2} \left(\frac{e^{2}}{m_{e1}c^{2}}\right)^{2} \left(\frac{E}{E'}\right)^{2} \left(\frac{E'}{E} + \frac{E}{E'} - 1 + \cos^{2}\theta_{O}\right) \qquad \text{II.3}$$

## II.2 Numerische Behandlung der Neutronikprobleme

Die Methode der diskreten Ordinaten wird in  $\underline{\sqrt{87}}$  beschrieben. Zur Berechnung des Neutronentransports wird das eindimensionale SN-Transportprogramm DTK  $\underline{\sqrt{107}}$  und das zweidimensionale Transportprogramm SNOW verwendet.

Zur numerischen Behandlung von II.1 werden die Variablen diskretisiert. Die Zahl der Ortsstützstellen ist dabei innerhalb des auf dem Rechner verfügbaren Speicherplatzes frei wählbar. Die Energievariable E wird in 26 Gruppen mit den Energiegrenzen  $0 \lt E \lt 10,5$  MeV diskretisiert. Die Gruppeneinteilung entspricht dem Gruppenschema des ABN-Satzes  $\langle \bar{1}\bar{3}\bar{7}\rangle$ . Als Querschnittssatz wurde der Gruppensatz KFKINR  $\langle \bar{1}\bar{4}\bar{7}\rangle$  verwendet. Die Winkelabhängigkeit kann maximal bis zur Ordnung S<sub>16</sub> behandelt werden, entsprechend einer Diskretisierung des halben Raumwinkels in 16 Bereiche. Dies gilt für kugelsymmetrische Probleme.

#### II.3 Numerische Behandlung des Gammatransports

Zur Berechnung des Gammatransports steht das eindimensionale Transportprogramm BIGGI  $/\frac{9}{7}$  für ebene Geometrie und Kugelgeometrie zur Verfügung. Auf Grund der Winkelabhängigkeit des differentiellen Comptonstreuprozesses (Gleichung II.2 und II.3) hat die Winkelabhängigkeit der Einstreuquelle eine komplizierte Form. Da weiterhin für hohe Gammaenergien (E > 2 MeV)  $\frac{d\Sigma}{d\Omega_0}$  stark winkelabhängig ist - mit einer bevorzugten Vorwärtssteurichtung  $/\overline{15}/$  -, ist eine sorgfältige Behandlung der Winkelabhängigkeit der Transportgleichung notwendig. BIGGI erlaubt eine Diskretisierung des Energiebereichs (Wellenlängenbereich) mit den Energiegrenzen 0,02 MeV  $\leq E \leq 15$  MeV in 51 Energiegruppen, die Verwendung von maximal 39 Ortsstützstellen und von 9 Winkelstützstellen.

Das BIGGI-Programm startet mit der einzugebenden Quellverteilung  $S(\underline{r}, \underline{E}, \underline{\Omega}) = \frac{1}{4\pi} S(\underline{r}, \underline{E})$ .  $S(\underline{r}, \underline{E})$  ist für die hier zu behandelnden Probleme isotrop und gegeben durch den Ausdruck:

$$S(\underline{r}, E) = I_{\gamma} N_{x} \sigma_{ax} (\underline{r}, E) \Phi (\underline{r}, E) H_{x}$$
 II.4

 $S(\underline{r}, E)$  gibt dabei die Dichte der Quellgamma's an, die durch Neutroneneinfangprozesse erzeugt werden.  $S(\underline{r}, E)$  ist nach II.4 proportional zum isotropen Neutronenfluß  $\Phi(\underline{r}, E)$ , zur Teilchenzahldichte N<sub>x</sub> des Elements X, welches nach dem Neutroneneinfangprozeß ein Gammaquant emittiert, zum mikroskopischen Absorptionsquerschnitt  $\sigma_{ax}$  dieses Elements und proportional zur Wahrscheinlichkeit I<sub>γ</sub> für die Emission eines Gammaquants nach einem Neutronen**ein**fang. H<sub>x</sub> ist der Isotopenanteil des γ-aktiven Elements X.

## II.4 <u>Der Gammatransport für den Sonderfall der Vernachlässigung</u> des differentiellen Comptonstreuprozesses

Wenn der differentielle Comptonstreuprozeß vernachlässigt werden kann, wird die Behandlung des Gammatransports einfach. Physikalisch bedeutet eine Vernachlässigung des Comptonprozesses, daß eine Hineinstreuung von Gammaquanten aus Energiebereichen höherer Energie in das betrachtete Energieintervall nicht berücksichtigt wird. Im Multigruppenformalismus bedeutet es weiterhin, daß jedes Gammaquant nach einem Comptonstreuprozeß das betrachtete Energieintervall verlassen hat, d.h. es gibt keine Streuung innerhalb einer Gruppe oder auch der Removalquerschnitt ist identisch zu dem totalen Querschnitt.

Wenn sich im experimentellen Gammapulshöhenspektrum der Peak der zu messenden Gammalinie gut vom Untergrund abhebt, ist im allgemeinen eine Bestimmung der Peakintensität möglich. Da die Energieauflösung der heute verwendeten Gammadetektoren (Ge(Li)-Detektor) so gut ist, daß die Halbwertsbreite der Energieauflösung im MeV-Bereich kleiner als 0,5% der zu messenden Energie ist (typischer Wert für E = 9 MeV ist eine Energieauflösung von 8 keV), führen Comptonstreuprozesse mit einer Winkelablenkung des primären Gammastrahls von 3 Grad bereits zur Herausstreuung aus dem betrachteten Energiefenster. Die Wahrscheinlichkeit dafür, daß Streuprozesse mit derart kleinen Richtungsänderungen auftreten, ist ca. 4 %, d.h. die oben getroffene Annahme, daß  $\Sigma_{tot} = \Sigma_{rem}$  ist, ist sicher richtig.<sup>\*</sup>)

Eine gute experimentelle Trennung von Peak und Untergrund ist möglich, wenn bei einer prompten  $(n\gamma)$ -Reaktion Gammaquanten einer Energie emittiert werden, die für ein Material charakteristisch sind und wenn diese Linie nicht von anderen Linien überdeckt wird. Dies ist z.B. bei hochenergetischen Capturegammaquanten der Fall. Eine Trennung von Peak und Untergrund ist auch möglich, wenn die Linien verzögerter Gammaquanten

<sup>\*)</sup> Die Abschätzung gilt für eine Gammaenergie E = 686 keV. Die angegebenen Werte werden für höherenergetische Gammaquanten kleiner.

gemessen werden. Wenn die Halbwertszeit des Kerns, der die Gammalinie emittiert, verschieden ist von den Halbwertszeiten konkurrierender verzögerter  $(n,\gamma)$ -Reaktionen, kann durch Anpassung der Bestrahlungszeitdauer bzw. der Wartezeit zwischen Bestrahlungsende und Meßbeginn an die Halbwertszeit die zu messende Gammalinie relativ zum Untergrund und zu anderen Linien optimalisiert werden.

Die Vernachlässigung des differentiellen Comptonstreuprozesses erlaubt allerdings nur eine Aussage über die Peakintensität einer bestimmten Linie. Keine Aussagen sind möglich bezüglich des Verhältnisses von Peak zu Untergrund, denn zum kontinuierlichen Untergrund tragen auch die comptongestreuten Gammaquanten bei.

Bei Vernachlässigung des differentiellen Comptonstreuprozesses lautet die Gammatransportgleichung für ein homogenes Medium in integrodifferentieller Form:

$$\underline{\Omega} \text{grad} \ F(\underline{r}, E, \underline{\Omega}) + \mu_{t}(E) F(\underline{r}, E, \underline{\Omega}) = S(\underline{r}, E, \underline{\Omega}) \qquad \text{II.5}$$

Dabei bedeuten

| $F(\underline{r}, E, \underline{\Omega})$ | orts-, energie- und winkelabhängiger Gammafluß   |
|---|--|
| μ <sub>t</sub> (E)                        | energieabhängiger totaler Schwächungskoeffizient |
| $S(r,E,\Omega)$                           | Quellterm, darstellbar nach Beziehung II.4       |

Da S( $\underline{r}, \underline{E}, \underline{\Omega}$ ) winkelunabhängig ist, folgt, daß auch F( $\underline{r}, \underline{E}, \underline{\Omega}$ ) isotrop ist. Dann vereinfacht sich Gleichung II.5 zu:

$$\underline{\Omega} \operatorname{grad} \Phi(\underline{r}, E) + \mu_{t}(E) \Phi(\underline{r}, E) = S(\underline{r}, E) \qquad \text{II.6}$$

Gleichung II.6 kann für ein homogenes Medium und für eine ortsunabhängige Quellverteilung  $S(\underline{r}, E) = K \quad S(E)$  in eindimensionaler Geometrie analytisch gelöst werden. In Kugelgeometrie lautet die Lösung:

- 8 -

$$\Phi(\mathbf{r}, \mathbf{E}) = \frac{\mathbf{K} \cdot \mathbf{S}(\mathbf{E})}{2r\mu_{t}^{2}(\mathbf{E})} \left[ 2r\mu_{t}(\mathbf{E}) - R\mu_{t}(\mathbf{E}) \left\{ \mathbf{E}_{2} \angle \overline{\mu}_{t}(\mathbf{E}) (\mathbf{R} - \mathbf{r}) \overline{/} - \mathbf{E}_{2} \angle \overline{\mu}_{t}(\mathbf{E}) (\mathbf{R} + \mathbf{r}) \overline{/} \right\}$$

$$II.7$$

$$- \mathbf{E}_{3} \angle \overline{\mu}_{t}(\mathbf{E}) (\mathbf{R} - \mathbf{r}) \overline{/} + \mathbf{E}_{3} \angle \overline{\mu}_{t}(\mathbf{E}) (\mathbf{R} + \mathbf{r}) \overline{/} \right]$$

9 -

mit R = Radius des betrachteten Bereichs  

$$E_n(x) = \int_{1}^{\infty} \frac{e^{-xu}}{u^n} du$$
 Exponentialintegral

Zur Berechnung von II.7 wurden folgende Eigenschaften der Exponentialintegrale  $E_n(x)$  benützt:

$$\int_{0}^{R} E_{1}(x) dx = 1 - E_{2}(R)$$
$$\int_{0}^{R} xE_{1}(x) dx = \frac{1}{2} - R E_{2}(R) - E_{3}(R)$$

Für  $R \gg \frac{1}{\mu_t}$  und Beschränkung auf  $r \ll \frac{1}{\mu_t}$  erhält man als Lösung für  $\Phi(r, E)$  aus Gleichung II.7:

Ein weiterer Sonderfall, für den die Lösung von II.6 eine einfache Form annimmt, ist der für kugelgeometrische Probleme bei Beschränkung auf das Zentrum r = 0. Man erhält ebenfalls für ein homogenes Medium:

$$\Phi(r=0,E) = \int_{0}^{\infty} S(r',E)e^{-\mu_{t}(E)r'} dr' \qquad \text{II.9}$$

Zur Überprüfung der Rechenresultate wird die für S(r) = const. analytisch gewonnene Lösung II.7 der Gleichung II.6 mit der

١

numerischen Lösung verglichen. Die Tabelle 1 zeigt für eine Kugel vom Radius R = 10 cm für  $\mu_t$  = 0,04 die exakte Lösung (Spalte 2) und die numerische Lösung (Spalte 3).

<u>Tabelle 1</u> Ortsabhängigkeit von  $\Phi(\mathbf{r})$  bei ortsunabhängiger Quelle  $S(\mathbf{r}, E) = \text{const.}$ 

| r(cm) | exakte<br>Lösung<br>G1.II.7 | numerische<br>Lösung |
|-------|-----------------------------|----------------------|
| 1     | 8,19                        | 8,25                 |
| 5     | 7,49                        | 7 <b>,</b> 5         |
| 8     | 6,14                        | 6,2                  |
| 10    | 3,87                        | 4,1                  |

Die Behandlung des Transports von Neutronen und Gammaquanten unterscheidet sich nur in der Winkelabhängigkeit des differentiellen Streuprozesses, d.h. bei einer Vernachlässigung des Comptonstreuprozesses kann die Berechnung des Gammatransports mit den gebräuchlichen Neutronentransportcodes durchgeführt werden. Dabei genügt eine monoenergetische Rechnung, denn es interessiert nur die Intensität der nichtgestreuten Gammaquanten.

III. Parameteruntersuchungen zum Neutronen- und Gammatransport bei der Lagerstättenprospektion am Beispiel Mittersill

Die Neutronenintensität und das Neutronenflußprofil müssen bekannt sein, damit eine sinnvolle Bestimmung der Materialkonzentration bei einer gemessenen Gammapeakintensität möglich ist. Beide Neutronikgrößen hängen von der Materialzusammensetzung des die Neutronenquelle umgebenden Volumens ab. Da die nachzuweisenden Materialien über  $(n,\gamma)$ -Reaktionen identifiziert werden, stellen diese Materialien Absorbermaterialien für thermische Neutronen dar. Mitunter liefert allerdings auch

- 10 -

der Einfang epithermischer Neutronen einen nicht zu vernachlässigenden Beitrag zur gemessenen Gammaintensität. Die Neutronenintensität und das Flußprofil sind abhängig von der Konzentration des Absorbermaterials und von dem Wassergehalt des bestrahlten Bereichs (Matrixeffekt). Demnach ist zunächst der Einfluß dieser Parameter auf die Neutronenflußverteilung rechnerisch zu untersuchen. Da eine Aussage über die Güte und die Verlässlichkeit der Rechenresultate wünschenswert ist, sind Modellexperimente zur Neutronik notwendig.

## III.1 <u>Das Sandhaufenmodellexperiment und Diskussion der</u> gewonnenen Resultate

Das Wolframmodellexperiment wurde an einem Sandfaß durchgeführt. Abb.l zeigt ein schematisches Bild der Anordnung. Sie besteht aus einem mit Hornblendesand (Materialzusammensetzung siehe Tabelle 2 als Ergebnis einer chemischen Analyse) gefüllten Eternitbehälter von 1,5 m Höhe und 1,2 m Durchmesser.

| Element                                   | Gew%   | Teilchenzahldichte<br>$N_{x} 10^{-24} cm^{-3}$  |
|---|--|---|
| W<br>Si<br>Al<br>Fe<br>Mg<br>Ca<br>C<br>O | O,89<br>31,4<br>6,5<br>3,96<br>4,1<br>4,56<br>O,17<br>46,8 | $5,85 	 10^{-5} \\ 1,35 	 10^{-2} \\ 2,9 	 10^{-3} \\ 8,6 	 10^{-4} \\ 2,0 	 10^{-3} \\ 1,76 	 10^{-3} \\ 1,76 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-4} \\ 3,54 	 10^{-2} \\ 1,2 	 28 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,7 	 10^{-3} \\ 1,$ |

<u>Tabelle 2</u> Materialdaten des Hornblendesands für das Sandhaufen-Modell-Experiment Dichte des Sands  $\rho = 2,01 \frac{g}{cm^3}$ 

Zur Simulation der Bohrlochgeometrie dient ein Plexiglasrohr von 7 mm Wandstärke und einem inneren Durchmesser von 11 cm (Zentralkanal). Für diese Anordnung wurden folgende Messungen der Intensität des schnellen und des thermischen Neutronenflusses durchgeführt:

- Messung der Ausflußintensität der schnellen Neutronen in halber Faßhöhe. Die Quelle war dabei auf die gleiche Höhe im Zentralkanal in das Faß eingefahren-
- 2. Messung der Ortsabhängigkeit des schnellen Flusses im Luftzentralkanal.
- Messung der Ortsabhängigkeit des schnellen Flusses im Zentralkanal. Dabei war zwischen Quelle und Detektor eine Quellabschirmung, bestehend aus 20 cm Wismut und 20 cm Polyäthylen angebracht.
- 4. Messung des thermischen Flusses im Zentralkanal am Ort der Quelle.
- 5. Messung des thermischen Flusses im Zentralkanal unterhalb einer Abschirmung, bestehend aus 20 cm Polyäthylen.

Die Energieauflösungseigenschaften eines Ge(Li)-Detektors werden von der Intensität der schnellen Neutronen beeinflußt  $2\overline{21}$ . Deshalb muß diese Intensität bei der Messung der prompten Gammastrahlung bekannt sein. Dazu wurden die Messungen zu den Punkten 2) und 3) durchgeführt.

Zur Bestimmung der durch eine Californium-252-Quelle bekannter Quellstärke in einem bremsenden und moderierenden Medium erzeugten Intensität schneller Neutronen wurde eine Neptunium-237-Spaltkammer verwendet.

Die neutroneninduzierte Spaltung an Np<sup>237</sup> ist eine Schwellreaktion mit einer Schwellenergie bei E = 0,2 MeV. Die Spaltkammer wurde in einem schnellen Neutronenfeld mit exakter  $\frac{1}{r2}$ -Abhängigkeit (Cf<sup>252</sup>-Punktquelle in Luft) kalibriert. Eine Berechnung der energetischen Flußform als Funktion des Quellabstandes in Luft zeigt, daß selbst in 2 m Entfernung von der Quelle die Energieverteilung des Quellneutronenspektrums unverändert bleibt.

- 12 -

Da die Spaltkammer eine zylindrische Form hat - äußere Dimensionen Höhe H = 10 cm, Durchmesser D = 3 cm - wurde eine Kalibrierung bei zwei Orientierungen relativ zu einem gerichteten Neutronenfeld durchgeführt. Bei der Kalibrierung I war die Spaltkammerzylinderachse senkrecht zur Flußrichtung, bei der Kalibrierung II parallel zur Flußrichtung orientiert.

Als Spaltkammerempfindlichkeiten wurden die in Tabelle 3 aufgeführten Werte ermittelt.

Tabelle 3 Kalibrierung der Np<sup>237</sup>-Spaltkammer in einem gerichteten Neutronenfeld

| Kalibrierung I  | EMP1 = 1,07 | $10^{-4} \frac{c/sec}{n/cm^2sec}$ |
|-----------------|-------------|-----------------------------------|
| Kalibrierung II | EMP2 = 7,38 | $10^{-5} \frac{c/sec}{n/cm^2sec}$ |

Die Np<sup>237</sup>-Spaltkammer wurde auf ihre Ansprechwahrscheinlichkeit für langsame und epithermische Neutronen überprüft. Dabei wurde ein nicht zu vernachlässigender Beitrag der durch thermische und epithermische Neutronen hervorgerufene Spaltungsprozesse zur Zählrate festgestellt.

Vermutlich sind geringe Verunreinigungen des Np<sup>237</sup> und die Bildung von U<sup>233</sup> durch α-Zerfall des Np<sup>237</sup> mit anschließendem β-Zerfall des Pa<sup>233</sup> für diese Effekte verantwortlich. Für die Spaltkammermessungen wurde die Np<sup>237</sup>-Spaltkammer deshalb in einer allseitig geschlossenen ca. 25 mm starken B<sub>4</sub>C-Abschirmung angeordnet.

Zur Bestimmung des thermischen Neutronenflusses wurden Goldfolien bekannter Dicke bestrahlt. Die Bestrahlungszeiten schwankten zwischen 4 h und 15 h. Die absolute Intensität des thermischen Flusses wurde durch Messung der Intensität der  $\beta$ -Strahlung in 2 $\pi$ -Geometrie bestimmt. Die Meßapparatur war zuvor mit einer  $4\pi\beta\gamma$ -Koinzidenzanlage geeicht worden.

Die Abb.2 zeigt den gemessenen ortsabhängigen Verlauf der Intensität des schnellen Neutronenflusses für die Fälle 2 und 3. Die gezeigten Werte sind auf die Quellstärke Q = 1 n/sec normiert. Die Abschirmung im Zentralkanal, bestehend aus 20 cm Wismut und 20 cm Polyäthylen, reduziert die Intensität des schnellen Neutronenflusses mit Energien E>0,2 MeV um den Faktor 5,5.

Da die Spaltkammerempfindlichkeit für ein Californiumquellspektrum bestimmt wurde, sind die Meßwerte zu korrigieren. Als Folge von Streuprozessen können die Quellneutronen einen Teil ihrer Energie verlieren, d.h. das primäre Quellspektrum wird zu kleineren Energien hin verschoben. Damit wird aber der effektive Spaltquerschnitt  $\sigma_f$  von Np<sup>237</sup> kleiner, d.h. die tatsächliche Spaltkammerempfindlichkeit ist kleiner als die experimentell für ein Californiumspektrum bestimmte Empfindlichkeit. Zur Korrektur dieses spektralen Effekts wurde mit berechneten Gruppenflüssen nach der Beziehung

**•**۳

$$\overline{\sigma_{f}} = \frac{\sum_{i=1}^{r} \sigma_{f_{i}} \Phi_{i} \Delta E_{i}}{\sum_{i=1}^{r} \Phi_{i} \Delta E_{i}}$$
III.1

ein effektives  $\sigma_{\rm f}$  bestimmt. Nach III.l ist dieses  $\sigma_{\rm f}$  von der Form des Spektrums, dessen Absolutwert bestimmt werden soll, abhängig. Das nach III.l berechnete  $\sigma_{\rm f}$  wurde mit  $\sigma_{\rm f}^{\rm Cf}$ , dem effektiven Spaltquerschnitt für das Californiumspektrum verglichen. Die Abweichung beträgt ca. 35%. Die in Abb.2 gezeigten Werte sind um diesen Effekt korrigiert.

Zur Abschätzung der Genauigkeit der Intensitätsaussagen der für die theoretischen Neutronik-Untersuchungen verwendeten ein- und zweidimensionalen Transportprogramme wurden die experimentell ermittelten Daten (Punkt 1-5 mit Ausnahme von

- 14 -

Punkt 3) rechnerisch bestimmt. Die Ausflußintensität des schnellen Neutronenflusses wurde in Kugelgeometrie in einer 26-Gruppen-S<sub>8</sub>-Rechnung berechnet. Die Tabelle 4 zeigt die Resultate der Rechnung für den über die Gruppen 1 bis 7 (entsprechend dem Energieintervall 0,2 MeV  $\leq E \leq$ 10,5 MeV) integrierten Fluß am Faßrand relativ zu einem  $\frac{1}{r^2}$ -Fluß in Abhängigkeit von dem Wassergehalt (Feuchte plus innermolekulares H<sub>2</sub>O) des Sandes in Gewichtsprozent.

Tabelle 4 Schwächung der Ausflußintensität des schnellen Flusses für verschiedene Wassergehalte des Sandes

| Gewichts-% H <sub>2</sub> O              | 0   | 1,7  | 3,0  | 10,0 |
|--|-----|------|------|------|
| Schwächung<br>gegenüber 1/r <sup>2</sup> | 8,2 | 12,6 | 18,5 | 61,8 |

Experimentell wurde ein Faktor 11,6 ermittelt. Dieser Faktor enthält ebenfalls die Korrektur der Spaltkammerempfindlichkeit durch die Abhängigkeit der spektralen Verteilung der schnellen Neutronen in Medien, in denen Neutronen durch elastische und inelastische Stöße gebremst werden können. Der Tabelle kann man entnehmen, daß die Reichweite der schnellen Neutronen im Gestein stark von dem Wassergehalt des Gesteins abhängt.

Zur Berechnung des ortsabhängigen schnellen Flusses im Zentralkanal muß die zylindrische Form des Zentralkanals mit dem 0,7 cm dicken Plexiglasrohr berücksichtigt werden. Dies erfordert eine Transportrechnung in zweidimensionaler Zylindergeometrie.

Die Ergebnisse der Rechnung für den Fall 2 (Ortsabhängigkeit im Zentralkanal ohne Quellabschirmung) sind in Abb.2 eingezeichnet. Da entlang der empfindlichen Länge der Spaltkammer von 10 cm der Neutronenfluß um mindestens den Faktor 2 abfällt, sind aus den gerechneten Werten durch Ortsintegration des Flusses über ein Längenelement  $\Delta z$  von 10 cm Werte  $\overline{\Phi}_i(z)$  7, 07

entsprechend

$$\overline{\Phi_{i}}(z) = \frac{1}{\Delta z} \int_{z-\frac{\Delta z}{\Delta z}} \Phi_{i}(z) dz \qquad \text{III.2}$$

bestimmt worden und daraus dann  $\Phi_{s}(z) = \sum_{i=1}^{2} \overline{\Phi_{i}(z)} \Delta E_{i}$ . Die in zweidimensionaler Geometrie gerechneten Flußwerte  $\Phi_{_{\mathbf{S}}}\left(\mathbf{z}\right)$  (durchgezogene Kurve) stimmen im ortsabhängigen Verlauf und in der absoluten Intensität befriedigend mit den Meßwerten überein.

Schließlich wurden die im Zentralkanal gemessenen thermischen Flußwerte mit gerechneten Werten verglichen. Sowohl die in Kugelgeometrie mit DTK als auch die in (r,z)-Geometrie mit SNOW berechneten Flußwerte stimmen mit den gemessenen Werten überein. Die Tabelle 5 zeigt die gerechneten und gemessenen Werte. Gerechnet wurde für mehrere H2O-Gehalte im Sand. Wieder stimmen die für einen H20-Anteil von ca. 1,7% berechneten Werte am besten mit den gemessenen überein.

Tabelle 5 Thermische Intensität im Zentralkanal am Ort der Quelle und unterhalb der Quellabschirmung, bestehend aus 20 cm Polyäthylen

| Ort   | $Gemessen \qquad Berechnet \Phi_{th}(\frac{n/cm^2se}{n/sec})$ |                       |  | $\frac{m^2 \sec}{ec}$ )                |
|---|---|-----------------------|--|--|
| im Zentral-<br>kanal  | $\Phi_{\text{th}}(\frac{n/cm^2 \sec}{n/\sec})$                | Gew.%H <sub>2</sub> O | DTK<br>Kugelgeometrie                                | SNOW<br>2-dim.Zyl.                     |
| am Quellort   | 2,6 10 <sup>-4</sup>  | 0<br>1,7<br>3<br>10   | $\begin{array}{rrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrrr$ | $2,7 10^{-4}$<br>1,15 10 <sup>-3</sup> |
| unterhalb<br>der Quell-<br>abschirmung<br>(20 cm Poly-<br>äthylen im<br>Zentralkanal) | 2,0 10 <sup>-4</sup>  | 1,6                   | 1,8 10 <sup>-4*)</sup>                               | 2,1 10 <sup>-4</sup>                   |

\*) Der mit DTK in Kugelgeometrie gerechnete Wert gilt für eine Cf-252-Quelle in Polyäthylen.

Aus dem Grad der Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten Neutronenflußverteilungen kann geschlossen werden, daß sowohl die eindimensionalen Rechnungen in Kugelgeometrie als auch die zweidimensionalen Rechnungen in (r,z)-Geometrie verläßliche Resultate sowohl für das Neutronenprofil als auch für die Intensität liefern. Damit ist auch die vereinfachende Annahme der Behandlung der Winkelabhängigkeit des Streuprozesses gerechtfertigt. Um schließlich zu zeigen, wie die Übereinstimmung von Messung und Rechnung in einem extremen Fall wird, wurde mit DTK in Kugelgeometrie und mit SNOW in (r,z)-Geometrie der ortsabhängige Verlauf des thermischen Neutronenflusses einer annähernd punktförmigen Californiumquelle in einem großen Wasserbehälter berechnet und mit Meßwerten verglichen. Die Meßwerte - gültig für eine Cf<sup>252</sup>-Quelle mit endlichem Volumen - wurden der Arbeit von Magnuson entnommen /16/. Abb.3 zeigt die Resultate der Rechnungen im Vergleich mit den Meßwerten. Das mit SNOW berechnete Flußprofil stimmt mit den gemessenen gut überein. Die absolute Intensität wird von der Rechnung um ca. 20% überschätzt. Das mit DTK gerechnete Flußprofil ist steiler als das gemessene. Dies gibt einen Hinweis darauf, daß die Wirkungsquerschnittsdaten für dieses Problem nicht geeignet sind. Die Behandlung der Winkelabhängigkeit des Streukerns in Transportnäherung ist für Wasser keine gute Näherung. Die Winkelabhängigkeit müßte in höherer Winkelordnung berücksichtigt werden.

III.2 Neutronik bei der Wolfram-Prospektion in Mittersill

In Mittersill wurde die Intensität der verzögerten Gammaquanten aus der Reaktion:

$$W^{186} + n \longrightarrow W^{187}$$

$$\frac{\beta}{T_{1/2}=24h} Re^{187} + \gamma$$

mit  $E_{\gamma} = 686 \text{ keV}$ 

gemessen. Da das Wolframisotop 186 sowohl thermische als auch epithermische Neutronen einfängt, sind sowohl thermische als auch epithermische Neutronenflüsse zu berechnen. Unter der Annahme, daß der Einfang der epithermischen Neutronen durch die Resonanz im Absorptionsquerschnitt bei der Energie E = 18,8 eV verursacht wird, muß die Intensität des epithermischen Neutronenflusses bei dieser Energie bekannt sein.  $\Phi_{epi}$  für E = 18,8 eV ergibt sich aus dem zu dieser Energie gehörenden Gruppenfluß zu:

$$\Phi_{\text{epi}}(\mathbf{r}) = \frac{\Phi_{20}(\mathbf{r})}{\Delta u_{20}} \qquad \text{III.3}$$

mit  $\Phi_{20}(r)$  Gruppenfluß der 20.ten Energiegruppe 10 eV  $\langle E \langle 21, 5 eV \text{ am Ort } r$   $\Delta u_{20}$  Lethargieintervall der 20.ten Energiegruppe  $\Delta u_{20} = \ln \frac{E_2^{20}}{E_1^{20}}$ mit  $E_1^{20}$  und  $E_2^{20}$  Energiegrenzen dieser Gruppe.

Für die beiden Extremfälle, trockenes Bohrloch und moderierendes Bohrloch, wurde die Abhängigkeit der Intensität und des Flußprofils der thermischen und der epithermischen Neutronen sowohl von dem  $H_2O$ -Gehalt als auch von dem Wolframgehalt des Gesteins untersucht. Dabei wurde angenommen, daß die Gesteinsfeuchte und der Wolframgehalt im Gestein homogen verteilt sind. Die Parameteruntersuchungen wurden in Kugelgeometrie durchgeführt. Das Bohrloch wurde dabei durch eine Kugel vom Radius R = 3,5 cm ersetzt.

Die Annahme einer homogenen Verteilung des Wolframs im Gestein ist bei der Bestimmung der Intensität der verzögerten Gammaquanten der Energie E = 686 keV berechtigt, wenn die Dicke der Wolframadern in der Größenordnung 20 cm und mehr liegt. Die freie Weglänge der 686 keV Gammaquanten im Mittersillgestein beträgt nur ca. 4 cm. Damit reicht der bei der Messung erfaßbare Volumenbereich nur ca. 20 cm tief in das Gestein hinein.

Die Tabelle 6 zeigt die bei der Berechnung der Neutronenintensität verwendeten Gesteinsarten, Hornblendefels und Scheelit-Reicherz mit ihrer prozentualen Zusammensetzung. In der Tabelle ist zusätzlich in der letzten Spalte der totale Schwächungskoeffizient  $\mu_t$  (cm<sup>-1</sup>) für die Gammaenergie E = 686 keV angegeben.

Tabelle 6 Materialzusammensetzung und Teilchendichte der Gesteinsarten, Hornblendefels und Scheelit-Reicherz

| a) | Hornblendefels                 | Dichte $\rho = 3, 16 \text{ g/cm}^3$ |
|----|--------------------------------|--------------------------------------|
|    | Sr0 <sub>2</sub>               | 47,5%                                |
|    | Al <sub>2</sub> 0 <sub>3</sub> | 12,6%                                |
|    | MgO                            | 25,0%                                |
|    | CaO                            | 7,3%                                 |
|    | Na <sub>2</sub> 0              | 1,2%                                 |
|    | H <sub>2</sub> O               | 1,48                                 |
|    | FeO                            | 5 %                                  |
| 1  |                                | 4                                    |

Teilchendichten von Hornblendefels

| Element | Teilchendichte<br>N <sub>x</sub> 10 <sup>-24</sup> cm <sup>-3</sup> | Totaler Quer-<br>schnitt in<br>barn/Atom für<br>E <sub>Y</sub> = 686 keV | Totaler Schwä-<br>chungskoeff.<br>µ <sub>t</sub> (cm <sup>-1</sup> ) |
|---------|---|--|--|
| Si      | 1,5 10 <sup>-2</sup>  | 3,5  | 5,25 10 <sup>-2</sup>  |
| Al      | 4,7 10 <sup>-3</sup>  | 3,2  | 1,5 10 <sup>-2</sup>   |
| Ca      | 2,476 10 <sup>-3</sup>  | 5,05   | 1,25 10 <sup>-2</sup>  |
| Mg      | 1,18 10 <sup>-2</sup>   | 3,0  | $3,54 10^{-2}$   |
| Na      | 7,36 10 <sup>-4</sup>   | 2,78   | 2,05 10 <sup>-3</sup>  |
| н       | 2,96 10 <sup>-3</sup>   | 0,25   | 0,74 10 <sup>-3</sup>  |
| 0       | 5,64 10 <sup>-2</sup>   | 2,03   | 11,4 10 <sup>-2</sup>  |
| Fe      | 1,7 10 <sup>-3</sup>  | 6,6  | 1,12 10 <sup>-2</sup>  |
|         |   |  | $\mu_{t} = 0,243$  |

| b) Scheelit-Reicherz | Dichte $\rho = 3,08 \text{ g/cm}^3$ |
|----------------------|-------------------------------------|
| sio,                 | . 87,1 %                            |
| wo <sub>3</sub>      | 10 %                                |
| CaO                  | 2,5 %                               |
| н <sub>2</sub> 0     | 0,4 %                               |

Teilchendichten von Scheelit-Reicherz

| Element | Teilchendichte<br>N <sub>x</sub> $10^{-24}$ cm <sup>-3</sup> | Totaler Quer-<br>schnitt in<br>barn/Atom für<br>E <sub>γ</sub> = 686 keV | Totaler Schwä-<br>chungskoeff.<br><sup>µ</sup> t <sup>(cm-1)</sup> |
|---------|--|--|--|
| Н       | 8,23 10 <sup>-4</sup>  | 0,25   | 0,02 10 <sup>-2</sup>  |
| 0       | 5,74 10 <sup>-2</sup>  | 2,03   | $11,6 10^{-2}$   |
| Si      | $2,69 10^{-2}$   | 3,5  | 9,4 10 <sup>-2</sup>   |
| Ca      | 8,26 10 <sup>-4</sup>  | 5,05   | $0,417 \ 10^{-2}$  |
| W       | 8,0 10 <sup>-4</sup>   | 26,5   | $2,12 10^{-2}$   |
|         |  |  | $\mu_{t} = 0,235$  |

Die Intensität des thermischen Neutronenflusses <sup>¶</sup>th ist gegeben durch: MARAN

$$\Phi_{\text{th}} = \int_{\mathbf{0}} \Phi(\mathbf{E}) d\mathbf{E}$$

Abb.4 zeigt die gerechnete Intensität des thermischen Neutronenflusses  $\Phi_{\text{th}}$  im trockenen Bohrloch in Abhängigkeit von dem H2O-Gehalt des Gesteins für drei verschiedene Wolframkonzentrationen in Gewichtsprozent.  $\Phi_{th}$  ist empfindlich von beiden Parametern abhängig. Die Abhängigkeit von der Wolframkonzentration (Konzentration des Absorbers) wird für zunehmenden Wassergehalt schwächer. Durch den hohen Wassergehalt werden viele Neutronen in den thermischen Bereich heruntergestreut. Gleichzeitig wird, falls  $\mathrm{N}_{\mathrm{H}} \gg \mathrm{N}_{\mathrm{W}}$  gilt, die Absorption der thermischen Neutronen am Wasserstoff vergleichbar mit der Absorption am Wolfram.

In Tabelle 7 sind gerechnete thermische und epithermische Neutronenintensitätswerte  $\Phi_{\rm th}$  und  $\Phi_{\rm epi}$  am Ort der Quelle für das trockene Bohrloch zusammengestellt. Außerdem ist in Tabelle 7 das Verhältnis  $\Phi_{\rm th}/\Phi_{\rm epi}$  angegeben. Man entnimmt der Tabelle, daß sowohl  $\Phi_{\rm th}$  als auch  $\Phi_{\rm epi}$  und damit auch  $\Phi_{\rm th}/\Phi_{\rm epi}$  von den Parametern Gesteinsfeuchte und Absorberkonzentration abhängen.

| Gew.%<br>WO <sub>3</sub> | Gew.%<br>H <sub>2</sub> O       | ${}^{\Phi}$ th                | <u>cm<sup>2</sup>sec</u><br>n/sec                | <sup>∲</sup> epi       | cm <sup>2</sup> sec<br>n/sec                     | $^{\Phi}$ th $^{/\Phi}$ epi |
|--------------------------|---------------------------------|-------------------------------|--|------------------------|--|-----------------------------|
| 0,13                     | 0                               | 6,9                           | $10^{-5}$  | 1,1                    | $10^{-4}$  | 0,63                        |
|                          | 0,45                            | 2,6                           | $10^{-4}$  | 1,2                    | $10^{-4}$  | 2,2                         |
|                          | 4,0                             | 2,0                           | $10^{-3}$  | 2,1                    | $10^{-4}$  | 9,5                         |
|                          | 11,0                            | 5,6                           | $10^{-3}$  | 2,3                    | $10^{-4}$  | 24,3                        |
| 1,5                      | 0<br>0,45<br>1,2<br>4,0<br>11,0 | 1,3<br>1,2<br>3,3<br>1,6<br>5 | $10^{-5}$<br>$10^{-4}$<br>$10^{-3}$<br>$10^{-3}$ | 5<br>8,2<br>1,9<br>2,3 | $10^{-5}$<br>$10^{-5}$<br>$10^{-4}$<br>$10^{-4}$ | O,26<br>1,5<br>8,4<br>21,7  |
| 6,6                      | 0                               | 8,1                           | $10^{-7}$  | 1,5                    | $10^{-5}$  | 0,05                        |
|                          | 0,45                            | 3,2                           | $10^{-5}$  | 4,5                    | $10^{-5}$  | 0,7                         |
|                          | 3,5                             | 6,3                           | $10^{-4}$  | 1,4                    | $10^{-4}$  | 4,5                         |
|                          | 11,0                            | 3,6                           | $10^{-3}$  | 2                      | $10^{-4}$  | 18,0                        |

<u>Tabelle 7</u> Thermische und epithermische Neutronenintensitätswerte für das trockene Bohrloch am Ort der Quelle

Anhand der Abb.4 und der Daten der Tabelle 7 kann gefolgert werden, daß durch eine Messung des thermischen und des epithermischen Flusses im trockenen Bohrloch eine Eingrenzung der Variationsbreite des Feuchtegehalts und der Wolframkonzentration des Gesteins möglich ist. Da weiterhin der Gammafluß der 686 keV Gammaquanten gemessen wird, kann eine erste Schätzung der Wolframteilchendichte erfolgen. Mit diesem Wert wird in einem weiteren Auswerteschritt aus den gemessenen Werten  $\Phi_{th}$  und  $\Phi_{epi}$  ein exakter Wert für den Feuchtegehalt des Gesteins bestimmt. Damit kann schließlich die gesuchte Wolframteilchendichte eindeutig bestimmt werden, selbstverständlich unter der Annahme einer homogenen Materialverteilung. Diese Voraussetzung liegt der Berechnung der Größen  $\Phi_{th}$  und  $\Phi_{epi}$  zugrunde und damit auch der Zuordnung der gesuchten Teilchendichte zum gemessenen Gammafluß, die rechnerisch erfolgt.

Abb.5 zeigt die Abhängigkeit der Intensität des thermischen Flusses  $\Phi_{th}$  von dem H<sub>2</sub>O-Gehalt und dem Wolframgehalt des Gesteins in einem moderierenden Bohrloch. Die Kurven liegen nahe beieinander und die Intensität im Bohrloch ist relativ unempfindlich gegen Änderungen des Wolfram- und des H<sub>2</sub>O-Gehalts. Die in der Abb.5 gezeigten Intensitätswerte  $\Phi_{th}$ gelten für die bei der Wolframprospektionsmessung in Mittersill benützte Quellmoderation. Sie wird erzeugt mit 1,2 cm Polyäthylen und einem Ringspalt von 0,5 cm H<sub>2</sub>O-Ringspalt war durch das H<sub>2</sub>O-gefüllte Bohrloch gegeben. Dabei wird angenommen, daß die Meßsondenachse mit der Bohrlochachse übereinstimmt.

In Tabelle 8 sind die gerechneten thermischen und epithermischen Neutronenintensitätswerte  $\Phi_{th}$  und  $\Phi_{epi}$  am Ort der Quelle (r=O) im Bohrloch für das moderierende Bohrloch zusammengestellt. Sowohl  $\Phi_{th}$  als auch  $\Phi_{epi}$  und damit auch  $\Phi_{th}/\Phi_{epi}$  sind nur noch schwach von den Parametern Gesteinsfeuchte und Wolframkonzentration abhängig. Damit ergibt sich die Schlußfolgerung, daß eine Messung von  $\Phi_{th}$  und  $\Phi_{epi}$  keine Zuordnung der Meßwerte zur Gesteinsfeuchte und zur Absorberkonzentration ermöglicht. Beide, sowohl der thermische Neutronenfluß als auch der epithermische am Ort der Quelle werden im wesentlichen von dem die Quelle umgebenden Moderator erzeugt.

- 22 -

| Gew.%<br>WO <sub>3</sub> | Gew.%<br>H <sub>2</sub> O | ${}^{\Phi}$ th | cm <sup>2</sup> sec<br>n/sec | <sup>∲</sup> epi | cm <sup>2</sup> sec<br>n/sec | ${}^{\Phi}$ th ${}^{/\Phi}$ epi |
|--------------------------|---------------------------|----------------|------------------------------|------------------|------------------------------|---------------------------------|
| 0,13                     | 0                         | 5,85           | $10^{-3}$                    | 5,7              | $10^{-4}$                    | 10,3                            |
|                          | 0,45                      | 6,35           | $10^{-3}$                    | 5,7              | $10^{-4}$                    | 11,0                            |
|                          | 2,2                       | 6,8            | $10^{-3}$                    | 5,3              | $10^{-4}$                    | 12,8                            |
|                          | 4,0                       | 7,7            | $10^{-3}$                    | 5,2              | $10^{-4}$                    | 14,8                            |
| 1,5                      | 0                         | 5,4            | $10^{-3}$                    | 5,5              | $10^{-4}$                    | 9,8                             |
|                          | 0,45                      | 5,6            | $10^{-4}$                    | 5,4              | $10^{-4}$                    | 10,4                            |
|                          | 2,2                       | 6,4            | $10^{-3}$                    | 5,3              | $10^{-4}$                    | 12,07                           |
|                          | 11,0                      | 1,06           | $10^{-2}$                    | 5,2              | $10^{-4}$                    | 20,4                            |
| 6,6                      | 0                         | 5,1            | $10^{-3}$                    | 5,4              | $10^{-4}$                    | 9,4                             |
|                          | 0,45                      | 5,2            | $10^{-3}$                    | 5,3              | $10^{-4}$                    | 9,8                             |
|                          | 2,2                       | 5,85           | $10^{-3}$                    | 5,3              | $10^{-4}$                    | 11,0                            |
|                          | 11,0                      | 9,4            | $10^{-3}$                    | 5,2              | $10^{-4}$                    | 18,1                            |

Tabelle 8 Thermische und epithermische Neutronenintensitätswerte für ein moderierendes Bohrloch am Ort der Quelle (r=0)

Eine moderierende Anordnung führt zu einer beträchtlichen Erhöhung der Empfindlichkeit der Konzentrationsbestimmung, da die Erhöhung von  $\Phi_{th}$  und  $\Phi_{epi}$  durch die Quellmoderation auf den ersten ca. 20 cm im Gestein, eine Erhöhung der Gammapeakzählrate bewirkt. Die Abb.6 zeigt thermische Flußprofile, sowohl für das trockene als auch das moderierende Bohrloch für 3 Fälle.

Fall 1: 0,13%  $WO_3$ , 0,005%  $H_2O$ Fall 2: 0,13%  $WO_3$ , 0,45 %  $H_2O$ Fall 3: 6,6%  $WO_3$ , 0,45 %  $H_2O$ 

Durch das moderierende Bohrloch wird das Flußprofil auf den ersten 30 bis 40 cm im Gestein stark modifiziert. Man erhält eine Intensitätserhöhung und einen stärker ortsabhängigen Verlauf. Dieser steile Ortsverlauf bewirkt eine erhöhte Empfindlichkeit des Gammaflusses gegenüber einer heterogenen Absorbermaterialverteilung in Bohrlochnähe und eine Reduzierung des ausleuchtbaren Volumens, da die Beiträge von zur Quelle benachbarten Gesteinsschichten zur Gammapeakzählrate stärker gewichtet werden. Das ortsabhängige Profil der thermischen Neutronen ist, wie man der Abb. entnimmt, sowohl von der Absorberkonzentration als auch von der Feuchtigkeit abhängig. Generell bedeutet eine Erhöhung des Feuchtegehalts eine Intensitätserhöhung und eine stärkere Ortsabhängigkeit des Profils. Eine Erhöhung der Absorberkonzentration bewirkt eine Intensitätsminderung und ebenfalls einen steileren Verlauf von  $\Phi_{th}$ . Der thermische Fluß in größeren Abständen von der Quelle wird durch schnelle Neutronen erzeugt. Diese schnellen Neutronen haben den Quellmoderationsbereich ohne Stoß durchflogen; das bedeutet, daß sich die Flußprofile für das trockene und das moderierende Bohrloch für große Abstände zur Quelle annähern müssen. Aber  $\Phi_{+h}$  ist für das trockene Bohrloch größer, denn die Intensität der schnellen Neutronen wird durch die Quellmoderation reduziert.

Abb.7 zeigt epithermische Flußprofile für zwei Fälle, für das trockene und das moderierende Bohrloch.

Fall 1: 0,13%  $WO_3$ , 0,45%  $H_2O$ Fall 2: 6,6%  $WO_3$ , 0,45%  $H_2O$ 

Die Ortsabhängigkeit ist ähnlich zur Abhängigkeit von  $\Phi_{th}(r)$ . Das moderierende Bohrloch erhöht die Intensität des epithermischen Flusses. Die Intensitätsunterschiede zwischen trockenem und moderierendem Bohrloch sind allerdings geringer als für  $\Phi_{th}$ . Bereits in Gesteinstiefen von ca. 20 cm zeigt  $\Phi_{epi}(r)$ für das trockene und das moderierende Bohrloch einen ähnlichen ortsabhängigen Verlauf.  $\Phi_{epi}(r)$  ist in größeren Gesteinstiefen wegen der fehlenden Quellmoderation für das trockene Bohrloch größer.

- 24 -

## III.3 Gammaintensitäten bei der Wolfram-Prospektion

Die Rechnungen zur Neutronik bilden die notwendige Vorarbeit für die Bestimmung der zu erwartenden Gammaintensität und für die damit mögliche Zuordnung der gemessenen Peak-Intensität einer charakteristischen Gammalinie zur Konzentration des zu prospektierenden Materials. Der Quellterm  $S(\underline{r},E)$ , für den der Gammatransport zu berechnen ist, ist gegeben durch Gleichung II.4. Er lautet:

 $S(\underline{r}, E) = I_{\gamma} N_{x} \sigma_{ax} (\underline{r}, E) \Phi (\underline{r}, E) H_{x}$  III.4

Der Quellterm  $S(\underline{r}, E)$  ist proportional zur gesuchten Teilchenzahldichte  $N_x$ . Damit ist bei bekanntem Neutronenfluß  $\Phi(\underline{r}, E)$ eine Bestimmung der Gammaintensität der charakteristischen Linie in Abhängigkeit von der Teilchenzahldichte  $N_x$  möglich. Die Berechnung der Peakintensitäten wurde für den Fall der Vernachlässigung des differentiellen Comptonstreuprozesses durchgeführt. Die Teilchenzahldichte  $N_A$  des zur simulierten Beschreibung des Gammatransports zu verwendenden Materials A wurde über die Bedingung

$$\mu_{tot} = N_A \sigma_{A,tot}$$
 III.5

bestimmt.  $\mu_{tot}$  ist der totale Gammaschwächungskoeffizient des Materials für die betrachtete Gammaenergie. Er setzt sich additiv zusammen aus dem Comptonschwächungskoeffizienten  $\mu_{C}$  und den Schwächungskoeffizienten  $\mu_{PP}$  und  $\mu_{PE}$  für den Paarerzeugungs- und den Photoelektronprozeß. Das gewählte Material A muß die Bedingung

 $\sigma_a \gg \sigma_s$  III.6

erfüllen. Dann ist  $\sigma_{tot}$  gegeben durch  $\sigma_a$ , und die Streuung innerhalb der Gruppe ist vernachlässigbar. Damit wird ebenfalls  $\sigma_{rem} \simeq \sigma_a$ . Als Material zur Simulation des Gammatransports wurde B<sup>10</sup> gewählt. Die Teilchendichte N<sub>B10</sub> wurde gemäß III.5 bestimmt.

Gammapeakintensitäten wurden in Kugelgeometrie berechnet. Die Ergebnisse der Rechnungen zeigen die Abb.8 und 9. Aufgetragen ist in dieser Abbildung die Intensität der Gammaquanten der Energie  $E_{\gamma} = 686$  keV im Bohrloch als Funktion des Feuchtegehalts und der Wolframkonzentration des Gesteins für die beiden Fälle, trockenes (Abb.8) und moderierendes Bohrloch (Abb.9). Berücksichtigt ist nur der Einfang thermischer Neutronen. Die Gammaintensität  $\Phi_{\gamma}$  im Bohrloch ist dabei auf die Neutronenquellstärke Q = 1 n/sec normiert.

Die Gammaintensität ist bei gleicher Wolframkonzentration für das moderierende Bohrloch wesentlich größer als für das trockene Bohrloch. Weiterhin ist für das moderierende Bohrloch die Gammaintensität für alle Feuchtekonzentrationen eine monotone Funktion der Wolframkonzentration. Damit ist eine eindeutige Zuordnung von gemessener Intensität zur Wolframkonzentration möglich. Dies gilt nicht für das trockene Bohrloch. Hier sind z.B. die zu erwartenden Gammaintensitäten bei einer  $H_2O$ -Feuchte des Gesteins kleiner ca. 0,5% für Wolframkonzentrationen größer als 2% unabhängig von der Wolframkonzentration. Außerdem zeigen jede der drei Intensitätskurven eine andere Abhängigkeit von der Gesteinsfeuchte.

Die in Abb.8 und 9 gezeigten Gammaintensitäten sind berechnet worden unter der Annahme, daß nur der Einfang thermischer Neutronen zur Aktivierung beiträgt. In Wirklichkeit hat das Wolframisotop 186 einen nicht zu vernachlässigenden Einfangquerschnitt für epithermische Neutronen. Dieser Einfang kann unter der Annahme, daß dafür im wesentlichen die Resonanz bei der Energie E = 18,8 eV verantwortlich ist, berechnet werden. Dazu wird der experimentell ermittelte Wert für

- 26 -

das Resonanzintegral RI von 396 barn  $\overline{117}$  zugrunde gelegt. RI ist definiert als:

$$RI = \int_{0}^{\infty} \sigma_{a}(E) \frac{dE}{E}$$
 III.7

Unter der oben getroffenen Annahme kann RI geschrieben werden zu:

$$RI \approx \int \sigma_{a}(E) \frac{dE}{E} = \overline{\sigma}_{a}^{20} \Delta u^{20} \qquad III.8$$

$$\Lambda 0 eV$$

Aus III.8 bestimmt sich der gruppengemittelte Einfangquerschnitt zu

$$\frac{1}{\sigma_{a}^{20}} = \frac{RI}{\Delta U_{20}} = \frac{396}{0,77} = 515 \text{ barn}$$

Die ortsabhängige epithermische Neutroneneinfangrate am  $W^{186}$ -Isotop im natürlichen Wolfram kann damit geschrieben werden:

$$C_{epi}(r) = H_{W186} N_W \overline{\sigma}_a^{20} \Phi_{20}(r) \qquad III.9$$

Dabei ist  $\Phi_{20}(r)$  der ortsabhängige Neutronenfluß in der 20.ten Energiegruppe. Unter der Annahme  $I_{\gamma} \approx I_{\gamma}^{\text{th}}$  (d.h. gleiche Gammaemissionswahrscheinlichkeit für Einfang von epithermischen und thermischen Neutronen) ist der Quellterm S(r) zur Berechnung der Gammaintensität durch Einfang epithermischer Neutronen gegeben durch:

$$S(r) = C_{epi}(r) I_{\gamma}^{th}$$
 III.10

Abb.10 zeigt die mit III.10 als Quellterm berechnete Gammaintensität  $\Phi_{\gamma}(0)$  für die beiden Fälle, trockenes und moderierendes Bohrloch. Die Intensität  $\Phi_{\gamma}(0)$  ist für das moderierende Bohrloch größer als für das trockene Bohrloch. Weiter ergibt sich für das moderierende Bohrloch eine stärkere Abhängigkeit der Gammaintensität von der Absorberkonzentration und nur eine geringe Abhängigkeit von der Gesteinsfeuchte.

Die Abbildungen 11 und 12 zeigen schließlich die Gesamtgammaintensität  $\Phi_{\gamma}^{\text{ges}}(0)$  im Bohrloch als Funktion des Wolframgehalts (in Gewichtsprozent) des Gesteins für verschiedene Gesteinsfeuchten.

Abb.ll gilt für das trockene Bohrloch. Der Abb. entnimmt man:

- 1)  $\Phi_{\gamma}$  ist stark von dem  ${\rm H_2O}\mathchar`-Gehalt$  (den man in der Regel nicht kennt) des Gesteins abhängig;
- 2) die Kurven zeigen eine starke negative Krümmung.  $\Phi_{\gamma}^{ges}(0)$  ist damit schwach von der Wolframkonzentration abhängig.

Die Abb.12 gilt für das moderierende Bohrloch. Hier gilt:

- 1) Die Kurven liegen nahe beieinander. Entsprechend gering ist die Abhängigkeit von  $\Phi_{\gamma}^{ges}$  von der Gesteinsfeuchte;
- 2)  $\Phi_{\gamma}$  ist eine fast lineare Funktion des Wolframgehalts;
- 3) die Gammaintensität ist beträchtlich höher als für das trockene Bohrloch.

Die eben diskutierten Gammaintensitäten gelten für den Fall, daß sich der Detektor am Ort der Quelle befindet. Diese Geometrie wird bei der Messung der Intensität der verzögerten Gammaquanten verwendet. Für diesen Fall empfiehlt es sich, eine moderierende Quelle zur Bestrahlung zu verwenden.

- 28 -

$$ZR = \Phi_{\gamma}(0) \quad Q_{n} \quad \varepsilon \quad F \quad e^{-\lambda t_{2}} (1-e^{-\lambda t_{1}}) \quad \frac{1-e^{-\lambda t_{3}}}{\lambda} \qquad \qquad \text{III.11}$$

In III.11 bedeuten:

| Φ <sub>Υ</sub> (Ο)                | Gammaintensität am Ort des Detektors                     |
|-----------------------------------|--|
| Qn                                | Neutronenquellstärke (n/sec)                             |
| ε                                 | Empfindlichkeit des Gammadetektors                       |
| F                                 | empfindliche Oberfläche des Detektors in ${\rm cm}^2$    |
| $\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}$ | mit $T_{1/2}$ Halbwertszeit des Zwischenkerns            |
| t <sub>l</sub>                    | Bestrahlungszeit   |
| t <sub>2</sub>                    | Zeitintervall zwischen Bestrahlungsende und<br>Meßbeginn |
| t <sub>3</sub>                    | Meßzeitintervall   |

Für die Manganknollen-Exploration ist die Bestimmung des prozentualen Gehalts der in den Knollen enthaltenen wertvollen Materialien Nickel, Kupfer, Mangan und Kobalt am Lagerort der Knollen auf dem Meeresboden (in ca. 3500 bis 6000 m Tiefe) wichtig, da die Abbauwürdigkeit der Vorkommen durch die Höhe des Gehalts dieser Materialien bestimmt wird  $/\frac{4}{4}$ .

Zur Bestimmung des Nickelgehalts der Mn-Knollen (typischer Wert ca. 1%) wird die prompte  $(n,\gamma)$ -Reaktion am Ni<sup>58</sup> benutzt. Diese Methode ist erfolgversprechend, da das Ni<sup>58</sup>-Isotop mit großer Häufigkeit (67,88%) im Nickel vorkommt, da die Intensität I<sub>γ</sub> = Zahl der emittierten Photonen pro 100 Neutroneneinfänge hoch ist (I<sub>γ</sub> = 41,65) und da die charakteristischen Gammaquanten eine Energie von 8,99 MeV haben  $/\overline{11}/$ . Gammaquanten dieser Energie haben eine große freie Weglänge (ca. 25 cm) in den in Frage kommenden Materialien, da ihr Schwächungskoeffizient  $\mu_t$  klein ist. Damit erscheint die Verwendung großer Bestrahlungsgeometrien vorteilhaft.

## IV.1 <u>Das Modellexperiment zur Manganknollen-Prospektion und</u> <u>Diskussion der gewonnenen Resultate</u>

Die Abb.13 zeigt schematisch den Aufbau des Manganknollen-\*) Modellexperiments.

Die Cf<sup>252</sup>-Quelle sitzt im Zentrum eines zylindrischen Gefäßes, welches mit Manganknollen mit loser Aufschüttung gefüllt ist. Die Quelle ist von 0,5 cm Plexiglas und 0,5 cm Polyäthylen umgeben. Der Mn-Knollenbehälter ist als Ganzes in einen Wasserbehälter getaucht. Das bedeutet, daß durch die lose Aufschüttung der Manganknollen ein Volumenanteil von ca. 30% bis 50% des Behälters mit Wasser gefüllt ist. Der den Mn-Knollenbereich (Sammelbehälter) umgebende H<sub>2</sub>O- bzw. Poly-

<sup>\*)</sup> Die Behältergröße kann der Abb.14 entnommen werden.

äthylenreflektor soll die Intensität der thermischen Neutronen im Randbereich der Manganknollen erhöhen und gleichzeitig eine gute Abschirmung für den Ge(Li)-Detektor darstellen. Der Gammadetektor sitzt in einer Entfernung von ca. 40 bis 50 cm vom Zentrum des Sammelbehälters und damit außerhalb des Sammelbehälters in der Abschirmung. Der beschriebene Modellaufbau wird auch für das eigentliche Prospektionsgerät beibehalten werden. Zur Beschreibung der Sammeltechnik der Knollen auf dem Meeresgrund siehe  $\underline{\sqrt{4/2}}$ .

Bei einem mittleren Anteil des Hauptabsorbers Mn von 23 Gewichtsprozent in den Knollen ergibt sich ein  $\Sigma_a^{total}$  von 0,086 cm<sup>-1</sup> für den makroskopischen Absorptionsquerschnitt thermischer Neutronen in den Knollen, während  $\Sigma_a^{total}$  für das umgebende Wasser ebenfalls für thermische Neutronen den Wert 0,0214 cm<sup>-1</sup> hat. Die Berechnungen des Neutronenflusses gehen von einer homogenisierten Anordnung aus. Zur Abschätzung von Fehlern, die durch die nicht berücksichtigte Heterogenität der Anordnung eventuell verursacht wird, wurde die Ortsabhängigkeit des absoluten thermischen Neutronenflusses in der Modellanordnung mit Goldfolien gemessen.

Abb.14 zeigt die gemessene Ortsabhängigkeit des thermischen Neutronenflusses bei einer Knollenschüttdichte von 60%. Die Abb. zeigt ebenfalls das Ergebnis der Transportrechnung in Kugelgeometrie. Die für die Rechnung verwendeten Materialien zeigt Tabelle 9. Die Gewichtsprozentanteile der aufgeführten Materialien wurden durch eine chemische Analyse bestimmt. In der letzten Spalte der Tabelle ist außerdem der totale Schwächungskoeffizient  $\mu_t$  (cm<sup>-1</sup>) für die Gammaenergie E=8,99 MeV angegeben. Die Übereinstimmung von Messung und Rechnung ist sowohl, was den Ortsverlauf als auch was den Absolutwert der Flußintensität betrifft, gut.

- 31 -

| Ele-<br>ment | Gew.8 | Teilchenzahl-<br>dichte<br>N 10 <sup>-24</sup> cm <sup>-3</sup> | <ul> <li>Teilchenzahl-<br/>dichte bei</li> <li>Schüttdichte</li> <li>60% Mn-Knollen</li> <li>40% H<sub>2</sub>0</li> </ul> | Totaler<br>Querschn.<br>in barn/<br>Atom für<br>E=8,99MeV | Tot.Sch<br>chungsk<br>µ <sub>t</sub> (cm <sup>-</sup> | wä-<br>oeff.<br>1) |
|--------------|-------|---|--|---|---|--------------------|
| Mn           | 23,1  | 5,31 10 <sup>-3</sup>   | 3,18 10 <sup>-3</sup>  | 2,59  | 8,24  | 10-3               |
| Fe           | 11,4  | $2,58 10^{-3}$  | $1,54 10^{-3}$   | 2,74  | 4,22  | 10 <sup>-3</sup>   |
| Si           | 10    | 4,5 10 <sup>-3</sup>  | $2,7 10^{-3}$  | 1,18  | 3,19  | 10 <sup>-3</sup>   |
| A1           | 4     | 1,87 10 <sup>-3</sup>   | 1,12 10 <sup>-3</sup>  | 1,08  | 1,21  | 10 <sup>-3</sup>   |
| Ca           | 1,4   | 4,41 10 <sup>-4</sup>   | 2,64 10 <sup>-4</sup>  | 1,86  | 4,91  | 10 <sup>-4</sup>   |
| Mg           | 1,4   | 7,3 10 <sup>-4</sup>  | 4,38 10 <sup>-4</sup>  | 0,919   | 4,03  | 10 <sup>-4</sup>   |
| C1           | 0,6   | 2,14 10 <sup>-4</sup>   | 1,28 10 4  |   |   |                    |
| Na           | 0,6   | $3,3 10^{-4}$   | 1,98 10 <sup>-4</sup>  | 0,82  | 1,62  | $10^{-4}$          |
| Ni           | 0,9   | 1,94 10-4   | 1,16 10 4  |   |   |                    |
| Cu           | 0,62  | 1,23 10 <sup>-4</sup>   | 7,4 10 <sup>-5</sup>   | 3,22  | 2,38  | $10^{-4}$          |
| Но           | 15    | н 2,1 10 <sup>-2</sup>  | $3,93 10^{-2}$   | 0,062   | 2,43  | 10-4               |
|              |       | 0 1,05 10 <sup>-2</sup>   |  | ·   | •   | _ 2                |
| 0            | 31    | 2,45 10 <sup>-2</sup>   | 0 3,43 10 <sup>-2</sup>  | 0,547   | 18,7  | 10-3               |
|              | 100   | Dichte der  | Mn-Knollen <sub>PKno</sub> <sup>µ</sup> t  | llen = 2,1<br>= 3,9                                       | $g/cm^3$ ,<br>3 10 <sup>-2</sup>                      |                    |

<u>Tabelle 9</u> Materialzusammensetzung der Mn-Knollen bei Berücksichtigung einer Schüttdichte von 60%

Da das Element Mn nicht in den verfügbaren Gruppensätzen enthalten ist, wurde es durch ein in der Gruppenbibliothek vorhandenes Element mit vergleichbarer Massenzahl ersetzt. Als solche Materialien kommen in Frage: Chlor, Vanadium und Titan. Diese Materialien haben ein anderes Verhältnis von  $\sigma_a/\sigma_s$ . Um auch diesen Effekt abschätzen zu können, wurde auch B<sup>10</sup> (reiner Absorber im thermischen Energiegebiet) als Mn-Ersatz gerechnet. Die Teilchendichte der Ersatzmaterialien wurde so gewählt, daß der makroskopische, thermische Absorptionsquerschnitt (Gruppe 26) für Mangan und das Ersatzmaterial gleich war. Die Ortsabhängigkeit des thermischen Neutronenflusses wurde durch die verschiedenen Manganersatzmaterialien nicht verändert. Die absolute Intensität variiert um ± 3%.

Die Abb.14 zeigt deutlich den Einfluß des  $H_2O$ -Reflektors auf das thermische Flußprofil. So steigt der thermische Neutronenfluß beim Übergang - Manganknollen  $\longrightarrow H_2O$ -Reflektor - innerhalb einer  $H_2O$ -Schichtdicke von 1 cm an. Der Reflektor erhöht damit die Intensität des thermischen Neutronenflusses im Manganknollenbereich.

## IV.2 Neutronik bei der maritimen Manganknollen-Prospektion

Die Materialzusammensetzung der Manganknollen kann in weiten Bereichen variieren, s. Tabelle 10 /18/. Da das in den Knollen hauptsächlich vorkommende Element Mangan einen hohen Absorptionsquerschnitt für thermische Neutronen hat  $(\sigma_a (E=25,3 \text{ meV})=13,2 \text{ barn})$ , werden das thermische Flußprofil und die Intensität von dem Mangangehalt abhängen. Weiterhin kann bei einer losen Aufschüttung der Knollenvolumenanteil (Schüttdichte) nicht konstant gehalten werden. Da der Knollensammelbehälter in Wasser lagert, bedeutet eine Änderung der Schüttdichte eine Änderung des Wasseranteils. Daraus ergibt sich eine weitere Abhängigkeit der thermischen Neutronenintensität und des Flußprofils.

| Element  | Gewichts      | prozent    | durchschnittlich |
|----------|---------------|------------|------------------|
|          | max.          | min.       |                  |
| Al       | 6,9           | 0,7        | 2,9              |
| re<br>Mn | 22,44<br>41,1 | 2,4<br>8,2 | 14,0<br>24,2     |
| Mg<br>Na | 1,8<br>4,7    | 1,0<br>1,5 | 1,4<br>2,6       |
| Co       | 2,3           | 0,014      | 0,35             |
| Ni       | 2             | 0,16       | 1,0              |
| Pb       | 0,36          | 0,02       | 0,05             |

Tabelle 10Manganknollen-Materialdaten mit\_Schwankungsbereich<br/>der Materialkonzentrationen /18/ für Pazifik-Knollen

Demnach ist der Einfluß verschiedener Manganknollen-Erzgehalte und verschiedener Schüttdichten auf das thermische Flußprofil und die Intensität der Neutronen zu untersuchen. Die Parameteruntersuchungen wurden in Kugelgeometrie durchgeführt. Dazu wurde die Dicke der Mn-Knollenkugelschale zu 25 cm gewählt. Für diese Dicke erhält man einen optimalen Gammafluß für Gammaquanten der Energie 8,99 MeV /197. Die Abb.15 zeigt den für diese Sammelbehältergröße berechneten ortsabhängigen thermischen Neutronenfluß bei einer Schüttdichte von 55% (55 Volumenprozent Mn-Knollen, 45% Meerwasser) und einem Mangangehalt der Knollen von 30 Gewichtsprozent. Der Salzgehalt des Meerwassers wurde berücksichtigt.

Für die Parameterstudien wurde die Schüttdichte im Bereich von 40% bis 70% und der Mn-Gehalt von 5% bis 45% variiert.<sup>\*)</sup> Der Aufbau der Anordnung war Cf<sup>252</sup>-Quelle in Luft (Radius 1,8 cm), Mn-Knollenaufschüttung (Dicke 25 cm) und H<sub>2</sub>O-Reflektor. Abb.16 zeigt die Abhängigkeit der thermischen Neutronenflußwerte  $\Phi_{th}$  (r=O) am Ort der Quelle und  $\Phi_{th}$  (r=R) an der Grenzfläche Mangan-Reflektor für verschiedene Schüttdichten in Abhängigkeit vom Mangangehalt der Knollen.

Im Zentrum ergibt sich eine stärkere Abhängigkeit der thermischen Neutronenintensität  $\Phi_{\rm th}$  von der Schüttdichte, außerdem erhöht sich  $\Phi_{\rm th}(0)$  mit abnehmender Schüttdichte (Zunahme des Meerwasseranteils) und nimmt mit wachsendem Mangangehalt der Knollen ab. An der Grenzfläche Mn-Reflektor wächst die thermische Intensität  $\Phi_{\rm th}(R)$  mit wachsender Schüttdichte, da Bremsprozesse der Quellneutronen bei abnehmender Wasserstoffteilchendichte seltener werden.  $\Phi_{\rm th}(R)$  nimmt mit wachsendem Mangangehalt der Knollen ab. Die Abhängigkeit ist stärker als für  $\Phi_{\rm th}(0)$ .

Für die Bestimmung des Nickelgehalts aus der gemessenen Gammapeakintensität der Nickellinie müssen demnach der Mangangehalt der Knollen und die Schüttdichte bekannt sein. Die Schüttdichte kann im Prinzip über eine Gammatransmissionsmessung bestimmt

34 -

<sup>\*)</sup> Entsprechend der Tabelle 10 wurde der Mangangehalt auf Kosten des Eisengehalts der Knollen variiert.

werden  $\langle \overline{20} \rangle$  oder eventuell durch eine Messung der Gammapeakintensität einer Chlorlinie. NaCl ist zu etwa 34,4% im Meerwasser enthalten. Die Konzentrationswerte sind nur schwach von der Wassertiefe abhängig  $\langle \overline{18} \rangle$ . Bei bekannter Schüttdichte kann aus der Messung der Peakintensität der Mangan-Gammalinie die ungefähre Manganteilchendichte bestimmt werden. Damit ist das Neutronenprofil bekannt. Mit diesem Profil kann in einem weiteren Rechenschritt die Gammapeakintensität der 8,99 MeV Ni-Quanten berechnet werden.

Der Einfluß einer Änderung der Nickelkonzentration auf das Neutronenflußprofil wurde ebenfalls untersucht. Dazu wurde die Nickelkonzentration von O% bis 2% variiert. Die Neutronenintensitätsänderung war kleiner als 2,5% und kann damit vernachlässigt werden. Daraus folgt, daß für eine feste Schüttdichte und bei konstantem Mangangehalt der Knollen die Gammapeakintensität der 8,99 MeV Quanten eine lineare Funktion der Nickelkonzentration ist.

## IV.3 Gammaintensitäten bei der Manganknollen-Prospektion

Bei der Berechnung der Gammaintensität der 8,99 MeV Nickelquanten ist nur der Einfang thermischer Neutronen zu berücksichtigen, denn erstens ist das Resonanzintegral von Nickel 58 kleiner als  $\sigma_a$  (25,3 meV) und zweitens ist durch den hohen Meerwasseranteil im Knollenbereich das Verhältnis  $\Phi_{\rm th}/\Phi_{\rm epi}$  größer als 10.

Abb.17 zeigt die gerechnete Intensität des 8,99 MeV Gammaflusses für drei verschiedene Mn-Konzentrationen der Knollen für die Schüttdichten 40% und 70%. In Tabelle 11 sind die gerechneten Intensitätswerte für die drei verschiedenen Schüttdichten 40%, 55% und 70% angegeben. Die Intensitätswerte gelten für einen Abstand - Neutronenquelle-Detektor - von 20 cm. Der gewählte Ortspunkt liegt somit noch innerhalb

- 35 -

des Sammelbehälters. Eine Umrechnung der in Tabelle 11 angegebenen  $\Phi_{\gamma}$ -Werte auf andere Abstände zwischen Quelle und Detektor kann mit Hilfe der Abb.18 leicht vorgenommen werden. Abb.18 zeigt den ortsabhängigen Verlauf des 8,99 MeV-Gammaflusses für das in Abb.15 gezeigte Neutronenprofil für Ortspunkte im Bereich  $O_{\checkmark}$  r  $\stackrel{\checkmark}{\checkmark}$  40 cm. Dabei liegt die Grenzfläche Manganknollen-Reflektor bei r = 26,5 cm.

Schüttdichte 40%

| Mn-Geha                   | alt 5   |                             | 1                  | .5                          | 45           |                             |
|---------------------------|---|-----------------------------|--------------------|-----------------------------|--------------|-----------------------------|
| Knol<br>Ni- Gew<br>Gew. % | $\frac{1}{\sqrt{8}} \frac{\sqrt{\gamma/cr}}{\sqrt{\gamma}}$ | n <sup>2</sup> sec<br>n/sec | Φ <sub>Υ</sub> Υ/α | m <sup>2</sup> sec<br>n/sec | Φ <u>γ/c</u> | m <sup>2</sup> sec<br>n/sec |
| 0                         | 0   |                             |                    | 0                           | 0            |                             |
| 0,5                       | 2,9   | 10 <sup>-7</sup>            | 2,3                | 10 <sup>-7</sup>            | 1,4          | 10 <sup>-7</sup>            |
| 1                         | 5,8   | 10 <sup>-7</sup>            | 4,6                | 10 <sup>-7</sup>            | 2,8          | 10 <sup>-7</sup>            |
| 2                         | 1,16  | 10 <sup>-6</sup>            | 9,4                | 10 <sup>-7</sup>            | 5,65         | 10 <sup>-7</sup>            |
| 2                         | 1,16  | 10 <sup>-6</sup>            | 9,4                | 10 <sup>-7</sup>            | 5,65         | 10 <sup>-7</sup>            |

Schüttdichte 55%

| Mn-Gehalt<br>der        | 5   | 15  | 30  | 45  |
|-------------------------|---|---|---|---|
| Knollen<br>Ni-<br>Gew.% | $_{\Phi_{\gamma}} \frac{\gamma/cm^{2}sec}{n/sec}$ | $\Phi_{\gamma} \frac{\gamma/cm^2 sec}{n/sec}$ | $_{\Phi_{\gamma}} \frac{\gamma/cm^2sec}{n/sec}$ | $_{\Phi_{\gamma}} \frac{\gamma/cm^{2}sec}{n/sec}$ |
| 0                       | 0   | 0   | 0   | 0   |
| 0,5                     | $2,56 10^{-7}$                                    | 1,97 10 <sup>-7</sup>                         | 1,46 10 <sup>-7</sup>                           | 1,09 10 <sup>-7</sup>                             |
| 1                       | $5,1 10^{-7}$                                     | 3,94 10 <sup>-7</sup>                         | 2,92 10 <sup>-7</sup>                           | 2,18 10 <sup>-7</sup>                             |
| 2                       | 1,02 10 <sup>-6</sup>                             | 7,87 10 <sup>-7</sup>                         | 5,85 10 <sup>-7</sup>                           | 4,36 10   |

Tabelle 11 Gammafluß für 8,99 MeV-Gammaquanten aus dem prompten Captureprozeß thermischer Neutronen am Nickelisotop 58 für einen Abstand von 20 cm von der Quelle.

| Mn-Gehalt<br>der        | 5                                  |                              | 15           |                             | 30           |                             | 45                        |                             |
|-------------------------|------------------------------------|------------------------------|--------------|-----------------------------|--------------|-----------------------------|---------------------------|-----------------------------|
| Knollen<br>Ni-<br>Gew.% | $\Phi_{\gamma} \frac{\gamma/c}{c}$ | m <sup>2</sup> sec<br>n/sec  | Φ <u>γ/c</u> | m <sup>2</sup> sec<br>n/sec | Φ <u>γ/c</u> | m <sup>2</sup> sec<br>n/sec | Φ <sub>γ</sub> <u>γ/c</u> | m <sup>2</sup> sec<br>n/sec |
| 0                       | С                                  | )                            | 0            |                             | 0            |                             | 0                         |                             |
| 0,5                     | 2,8                                | 10 <sup>-7<sup>-</sup></sup> | 1,67         | 10 <sup>-7</sup>            | 1,17         | 10 <sup>-7</sup>            | 8,6                       | 10 <sup>-8</sup>            |
| 1                       | 5,6                                | 10 <sup>-7</sup>             | 3,34         | 10 <sup>-7</sup>            | 2,35         | 10 <sup>-7</sup>            | 1,72                      | 10 <sup>-7</sup>            |
| 2                       | 1,1                                | 10 <sup>-6</sup>             | 6,7          | 10 <sup>-7</sup>            | 4,7          | 10 <sup>-7</sup>            | 3,45                      | 10 <sup>-7</sup>            |

Schüttdichte 70%

Schließlich zeigt Abb.19 den ortsabhängigen Verlauf des schnellen Neutronenflusses  $\Phi_{\rm s}(r)$  für Energien E>0,2 MeV für den Fall: Schüttdichte 70%, 5% Mn in den Knollen. Mit Hilfe dieser Kurve kann bei vorgegebenem Abstand zwischen Quelle und Detektor die maximale Bestrahlungszeit berechnet werden, der ein Ge(Li)-Detektor ausgesetzt werden darf, ohne daß sich seine Energieauflösungseigenschaften merklich verschlechtern. Neutronenfluenzen ( $\Phi$  t) > 10<sup>9</sup> n/cm<sup>2</sup> führen zu einer Verschlechterung des Auflösungsvermögens um ca. 50% /21/.

## V. Schlußfolgerungen, Zusammenfassung

Die Konzentrationsbestimmung von Elementen ist möglich, wenn die elementspezifischen neutroneninduzierten Linien im Gammaspektrum identifiziert werden können. Als Ergebnis der umfangreichen Parameteruntersuchungen zur Lagerstättenprospektion mit neutroneninduzierter Gammastrahlung ergibt sich für die terrestrische Prospektion bei Unterscheidung zwischen Aktivierungs- und prompter Gammamessung:

## a) Aktivierungsmessung

Die Intensität der thermischen und u.U. der epithermischen Neutronen am Meßort der Gammaintensität muß bekannt sein. Da beide Größen von der Zusammensetzung der das Bohrloch umgebenden Materialien (Matrix) abhängen, müssen sie experimentell bestimmt werden, da i.a. wenig über die Matrix bekannt ist. Wenn die Quellneutronen nur im Gestein abgebremst und thermalisiert werden (keine Quellmoderation, kein Wasser im Bohrloch), hängen die zu bestimmenden Neutronikgrößen empfindlich von der Gesteinsfeuchte und von der Konzentration des Neutronenabsorbers, der in der Regel mit dem nachzuweisenden Element identisch ist, ab.

Durch die Verwendung einer moderierenden Neutronenquelle für die Aktivierungsanalyse gelingt es, den Einfluß der Gesteinsfeuchte auf die Gammaintensität zu reduzieren. Gleichzeitig wird die Gammaintensität am Bestrahlungsort durch die besträchtliche Erhöhung des thermischen Neutronenflusses größer. Durch einen nahezu linearen Zusammenhang zwischen Gammaintensität und Absorberkonzentration ist eine eindeutige Konzentrationsbestimmung möglich.

Die Messung der Neutronikgrößen kann in der Bestrahlungsphase erfolgen. Da für die Aktivierungsanalyse eine moderierende Neutronenquelle vorteilhaft ist, muß zwischen Quelle und Neutronendetektor eine Abschirmung für thermische Neutronen eingebracht werden. Die gemessenen Neutronikgrößen werden zur Bestimmung der Gesteinsfeuchte und zur Kontrolle der Neutronik-Rechenresultate benötigt.

#### b) Messung der prompten Gammastrahlung

Der Gammadetektor muß gegen die schnellen Neutronen und die Gammastrahlung der Quelle abgeschirmt werden. Eine experimentelle Untersuchung des Problems (s. Abb.2) zeigt, daß die Intensität des schnellen Neutronenflusses im trockenen Bohrloch durch eine Quellabschirmung, bestehend aus 20 cm Wismut und 20 cm Polyäthylen, um einen ortsabhängigen Faktor reduziert wird. Für Abstände Quelle-Detektor > 50 cm ist dieser Faktor etwas größer als 5. Für eine Quelle der Quellstärke 10<sup>9</sup> n/sec sollte der Abstand Quelle-Detektor ca. 75 cm betragen, damit während eines angenommenen Meßintervalls von ca. 7 Tagen keine Verschlechterung der Energieauflösungseigenschaften des Gammadetektors auftritt.

Der Fall des moderierenden Bohrlochs (in Mittersillgeometrie) wurde theoretisch untersucht. Durch eine Quellabschirmung, bestehend aus 20 cm Wismut und 20 cm Polyäthylen, ergibt sich hier eine Reduzierung der Intensität der schnellen Neutronen um einen ortsabhängigen Faktor, der für Abstände - Quelle-Detektor - größer als 50 cm größer als 10 ist. Die Tabelle 12 zeigt als Resultat dieser Rechnungen die Intensität des schnellen und des thermischen Neutronenflusses im Bohrloch für verschiedene Abstände - Quelle-Detektor - (Spalten 1, 2 und 3) sowie die Quellstärke einer Californium-Neutronenquelle, wenn  $\Phi_{s} \leq 10^{3} \text{ n/cm}^{2} \text{sec}$  am Ort des Detektors sein soll (Spalte 4) sowie die sich damit ergebende Intensität der thermischen Neutronen (Spalte 5). Der Spalte 5 kann man entnehmen, daß auf Grund der starken Ortsabhängigkeit von  $\Phi_{g}$  die Verwendung einer Quelle hoher Quellstärke und Positionierung des Detektors in großen Abständen von der Quelle besser ist als die Verwendung einer schwachen Quelle desselben Typs mit Verminderung des Quellabstands.

Diese Aussagen gelten nur für den Neutronentransport und unter der Voraussetzung, daß die Handhabung der Quelle keine Schwierigkeiten bereitet sowie bei einer homogenen Verteilung des nachzuweisenden Materials.

Bei der Verwendung von Cf<sup>252</sup> als Neutronenquelle ist aber noch zusätzlich die Intensitätsverteilung der Quellgammas zu berücksichtigen. Eine einfache Abschätzung, bei der angenommen wird, daß die Ortsabhängigkeit der Intensität der Gammaquanten gemäß  $e^{\mu t^{r}}/4\pi r^{2}$  berechnet werden kann, zeigt z.B. für Gammaquanten der Energie 6 MeV, daß die Intensität bei Erhöhung des Quellabstands von 44 cm auf 70 cm um den Faktor 21 geschwächt wird. Dabei ist  $\mu_t = 0,0824 \text{ cm}^{-1}$ . Eine Erhöhung des Abstands Quelle-Detektor bewirkt damit trotz der relativen Erhöhung der Quellstärke um den Faktor 10 eine relative Minderung der Intensität der Quellgammas mindestens um den Faktor 2.

Tabelle 12Berechnung der Intensität der schnellen und<br/>der thermischen Neutronen für das Mittersill-<br/>bohrloch bei einer Quellabschirmung von 20 cm<br/>Wismut und 20 cm Polyäthylen zwischen Quelle<br/>und Detektor

| Abstand<br>Quelle-Detektor<br>(cm) | $\Phi_{s}(0) = \frac{1}{1} \Phi_{i} \Delta E_{i}$ $(\frac{n/cm^{2}sec}{n/sec})$ | $\Phi_{\text{th}}(0)$<br>$(\frac{n/cm^2 sec}{n/sec})$ | $Q_n (n/sec)$<br>damit<br>$\Phi_s < 10^3 \frac{n}{cm^2 sec}$ | $\Phi_{th}(0)$<br>(n/cm <sup>2</sup> sec) |
|------------------------------------|---|---|--|---|
| 44                                 | 5,8 10 <sup>-6</sup>  | 7,2 10 <sup>-5</sup>                                  | 1,7 10 <sup>8</sup>  | 1,2 104                                   |
| 50                                 | 4,8 10 <sup>-6</sup>  | 5,3 H   | 2,1 10 <sup>8</sup>  | 1,1 "                                     |
| 53                                 | 3,7 1   | 4,4 "   | 2,7 1  | 1,2 4                                     |
| 57                                 | 2,3 N   | 3,3 N   | 4,3 1  | 1,4 "                                     |
| 60                                 | 1,6 10 <sup>-6</sup>  | 2,5 "   | 6,2 11   | 1,5 "                                     |
| 65                                 | 1,2 10 <sup>-6</sup>  | 2,0 1   | 8,3 10 <sup>8</sup>  | 1,7 4                                     |
| 70                                 | 5,8 10 <sup>-7</sup>  | 1,3 10 <sup>-5</sup>                                  | 1,7 10 <sup>9</sup>  | 2,2 104                                   |

Die bei der Messung der prompten Gammaquanten verwendete Quellabschirmung sollte in der Reihenfolge: Quelle-Gammaabschirmmaterial (z.B. Wismut) - Polyäthylen und Detektor angeordnet sein, damit der schnelle Neutronenfluß in den Gesteinsschichten in Höhe des Detektors minimal geschwächt wird. Die Intensität der thermischen und der epithermischen Neutronen am Ort des Detektors sollte gemessen werden. Dazu muß zwischen die Polyäthylenquellabschirmung und den Neutronen-Detektor eine Abschirmung für thermische Neutronen eingebracht werden.

- 40 -

Die Bestimmung der Elementkonzentration aus der gemessenen Intensität der charakteristischen Gammalinie kann nach zwei Methoden erfolgen:

- Über eine theoretische Eichkurve. In diesem Fall ist der Einfluß der Matrix und der Elementkonzentration auf die Gammaintensität rechnerisch zu untersuchen.
- Über einen Vergleich der in-situ Meßresultate mit den Labor-Resultaten, die an einem simulierten Bohrloch gewonnen wurden.

Für die maritime Prospektion der Manganknollen ergibt sich: Wenn die Schüttdichte der Knollen und die Konzentration des Neutronenabsorbers Mangan in den Knollen bekannt ist, kann der ortsabhängige thermische Neutronenfluß bestimmt werden. Damit kann aus der Messung der Intensität einer charakteristischen Gammalinie die zugehörige Materialkonzentration rechnerisch bestimmt werden. Die relativ schwache Abhängigkeit des thermischen Neutronenflusses  $\Phi_{th}(R)$  am Reflektorrand von der Knollenschüttdichte erschwert eine eindeutige Bestimmung der Schüttdichte aus der Messung von  $\Phi_{th}(R)$ . Trotzdem sollte der Einsatz eines Neutronendetektors vorgesehen werden. Damit ist eine einfache Kontrolle der Zuverlässigkeit und der Reproduzierbarkeit der Messungen möglich.

## Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit untersucht die Möglichkeit der Anwendung der neutroneninduzierten Gammastrahlung zur Prospektion von Erzen. Dabei sind aus der Messung von Peakzählraten charakteristischer Gammalinien Aussagen über die Konzentration der die Gammalinien erzeugenden Materialien zu machen. Diese Zuordnung hat rechnerisch zu erfolgen. Dazu wird die Gammaintensität für eine vorgegebene Neutronenflußverteilung berechnet und mit der gemessenen verglichen. Zunächst ist also eine systematische Untersuchung der Abhängigkeit der Intensität der thermischen und der epithermischen Neutronen sowie des Neutronenflußprofils von dem Wassergehalt des bestrahlten Volumens und der Konzentration der Materialien, die nachgewiesen werden sollen, durchzuführen.

Die Neutronikrechnungen werden unter der Annahme einer homogenen Verteilung des nachzuweisenden Materials und einer homogenen Verteilung eventuell vorhandener neutronenabsorbierender Materialien durchgeführt. Es zeigt sich, daß bei den Bohrlochprospektionsmethoden eine Messung des thermischen und des epithermischen Neutronenflusses in einem trockenen Bohrloch mit einer Messung des Gammapulshöhenspektrums im moderierenden Bohrloch kombiniert werden sollte. Aus den drei Meßwerten ist eine Bestimmung der Konzentration des nachzuweisenden Materials und der Gesteinsfeuchte möglich.

Bei der maritimen Prospektion von Manganknollen wird die Neutronenflußverteilung von der Schüttdichte, dem Mangangehalt und dem Wassergehalt der Knollen bestimmt. Die Abhängigkeit von der Schüttdichte und der Mangankonzentration wurde untersucht. Die zu erwartende Intensität der 8,99 MeV-Nickelgammaquanten wird angegeben.

Die durchgeführten Untersuchungen erlauben eine Abschätzung der Nachweisempfindlichkeit und ermöglichen Aussagen über die nötigen Meß- bzw. Bestrahlungszeiten und über die Genauigkeit der zu erwartenden Resultate.

- 42 -

Literaturverzeichnis

- /1/ CONF-710402 ANS Topical Meeting, April 1971, Vol.III
- $\sqrt{27}$  Californium-252 Progress Nr. 12, Juli 1972
- <u>/3</u>/ CONF-710402 ANS Topical Meeting, April 1971, Vol.II, Session II
- <u>/4</u>/ KFK-1656, 1. Halbjahresbericht 1972, PACT-Bericht Nr. 24, p. 185
- <u>/5</u>/ H. Berger, Neutron Radiography, Elsevier Publishing Company, New York, 1965
- $\sqrt{6}$  ANS Topical Meeting, Sept. 1972, Austin, Texas
- $\sqrt{7}$  H. Werle, Externer Bericht INR-4/70-25
- <u>/8</u>/ H. Greenspan, C.N. Kelber, D. Okrent, Computing Methods in Reactor Physics, Gordon and Brech Science Publishers, New York, 1968
- /97 H. Penkuhn, EUR 3555 e
- 10 C. Günther, W. Kinnebrock, KFK-1381, März 1971
- /11/ D. Duffey, A. El-Kady, F.E. Senftle, Nuclear Instruments and Methods 80, 1970, 149-171
- /12/ ANS-Topical Meeting, Sept. 1972, Austin, Texas; Session III, Oceanographic and Geoscience Applications of Californium-252
- $\sqrt{137}$  L.P. Abagjan et al., KFK-tr-144

43 -

- $\sqrt{147}$  E. Kiefhaber, KFK-1572, 1972
- $\overline{157}$  H. Goldstein, The Attennation of Gamma Rays and Neutrons in Reactor Shields
- /167 P. Magnuson, CONF-681032, p. 347, 1968
- /17/ J.J. Scoville, E. Fast, D.W. Knight, Trans. Am. Nucl. Soc. 5, Nr.2, 377, 1962
- <u>/18</u>/ R.A. Horne, Marine Chemistry, Wiley Interscience, New York, 1969
- /19/ KFK-1788, 2. Halbjahresbericht 1972, PACT-Bericht Nr. 34
- $\sqrt{2}$ Q $\overline{7}$  U. Fanger, Persönliche Mitteilung
- /21/ J.M. Graf, W.R. Johnson, Trans. Am. Nucl. Soc. Vol.15, Nr.2, 710, 1972



Abb.2 Gemessener und berechneter ortsabhängiger Verlauf der Intensität des schnellen Neutronenflusses (E>O,2 MeV) im Zentralkanal

<u>Abb.1</u> Schematischer Aufbau des Sandhaufenmodellexperiments



<u>Abb.3</u> Gerechnete und gemessene Ortsabhängigkeit des thermischen Neutronenflusses einer Cf<sup>252</sup>-Quelle in Wasser



Abb.4 Abhängigkeit der Intensität der thermischen Neutronen im Bohrloch (r=O) am Ort der Quelle von der Gesteinsfeuchte und der Wolframkonzentration für ein trockenes Bohrloch



Abb.5 Abhängigkeit der Intensität der thermischen Neutronen im Bohrloch (r=0) am Ort der Quelle von der Gesteinsfeuchte und der Wolframkonzentration für ein moderierendes Bohrloch



Abb.6 Ortsabhängigkeit des thermischen Neutronenflusses  $\Phi_{th}(r)$ (Profil) für das trockene und das moderierende Bohrloch für die Fälle 0,12% WO<sub>3</sub> 0,005% H<sub>2</sub>O; 0,13% WO<sub>3</sub> 0,45% H<sub>2</sub>O und 6,6% WO<sub>3</sub> 0,45% H<sub>2</sub>O



Abb.7 Ortsabhängigkeit des epithermischen Neutronenflusses <sup>\$\phi\_epi(r)\$</sup> für das trockene und das moderierende Bohrloch für die Fälle 0,13% WO<sub>3</sub> 0,45% H<sub>2</sub>O; 6,6% WO<sub>3</sub> 0,45% H<sub>2</sub>O



Abb.8 Intensität der Gammaquanten der Energie E = 686 keV im Bohrloch (r=O) für das trockene Bohrloch als Funktion des Wolframgehalts (in Gewichtsprozent) für verschiedene Gesteinsfeuchten (Gew.%) bei Aktivierung durch thermische Neutronen



<u>Abb.9</u> Intensität der Gammaquanten der Energie E = 686 keV im Bohrloch (r=O) für das moderierende Bohrloch in Abhängigkeit von dem Wolframgehalt für verschiedene Gesteinsfeuchten bei Aktivierung durch thermische Neutronen



<u>Abb.10</u> Intensität der Gammaquanten der Energie 686 keV für ein trockenes und ein moderierendes Bohrloch bei r=0 in Abhängigkeit von dem Wolframgehalt für verschiedene Gesteinsfeuchten (Gewichtsprozent) bei Aktivierung durch epithermische Neutronen



Abb.11 Intensität der 686 keV Gammaquanten für ein trockenes Bohrloch als Funktion des Wolframgehalts für verschiedene Gesteinsfeuchten (Gewichtsprozent) bei Aktivierung durch thermische und epithermische Neutronen



Abb.12 Intensität der 686 keV Gammaquanten für ein moderierendes Bohrloch als Funktion des Wolframgehalts für verschiedene Gesteinsfeuchten (Gewichtsprozent) bei Aktivierung durch thermische und epithermische Neutronen



Abb.13 Schematischer Aufbau des Manganknollen-Modellexperiments



Abb.14 Gemessenes und berechnetes thermisches Neutronenprofil für die Manganknollen-Modellanordnung



<u>Abb.15</u> Berechnetes thermisches Neutronenflußprofil für eine Sammelbehältergröße von 26,5 cm



Abb.16 Abhängigkeit der thermischen Neutronenintensität am Ort der Quelle (r=O) und am Ort des Reflektors (R=26,5 cm) von der Schüttdichte und dem Mangangehalt der Knollen



Abb.17 Abhängigkeit der Intensität der 8,99 MeV Nickel-Gammaquanten von der Nickelkonzentration für zwei verschiedene Schüttdichten und verschiedene Mangangehalte (Gewichtsprozent) der Knollen



Abb.18 Ortsabhängiger Verlauf der Intensität der 8,99 MeV Gammaquanten in einem Manganknollen-Sammelbehälter mit dem Radius R = 26,5 cm



Abb.19 Ortsabhängiger Verlauf des schnellen Neutronenflusses <sup>Φ</sup><sub>S</sub>(E>O,2 MeV) in dem Manganknollen-Sammelbehälter und im H<sub>2</sub>O-Reflektor