

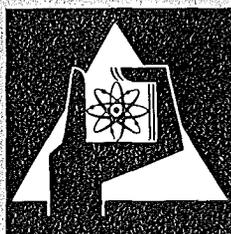
**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

April 1974

KFK 1849

Projekt Actiniden

Jahresbericht 1973



**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

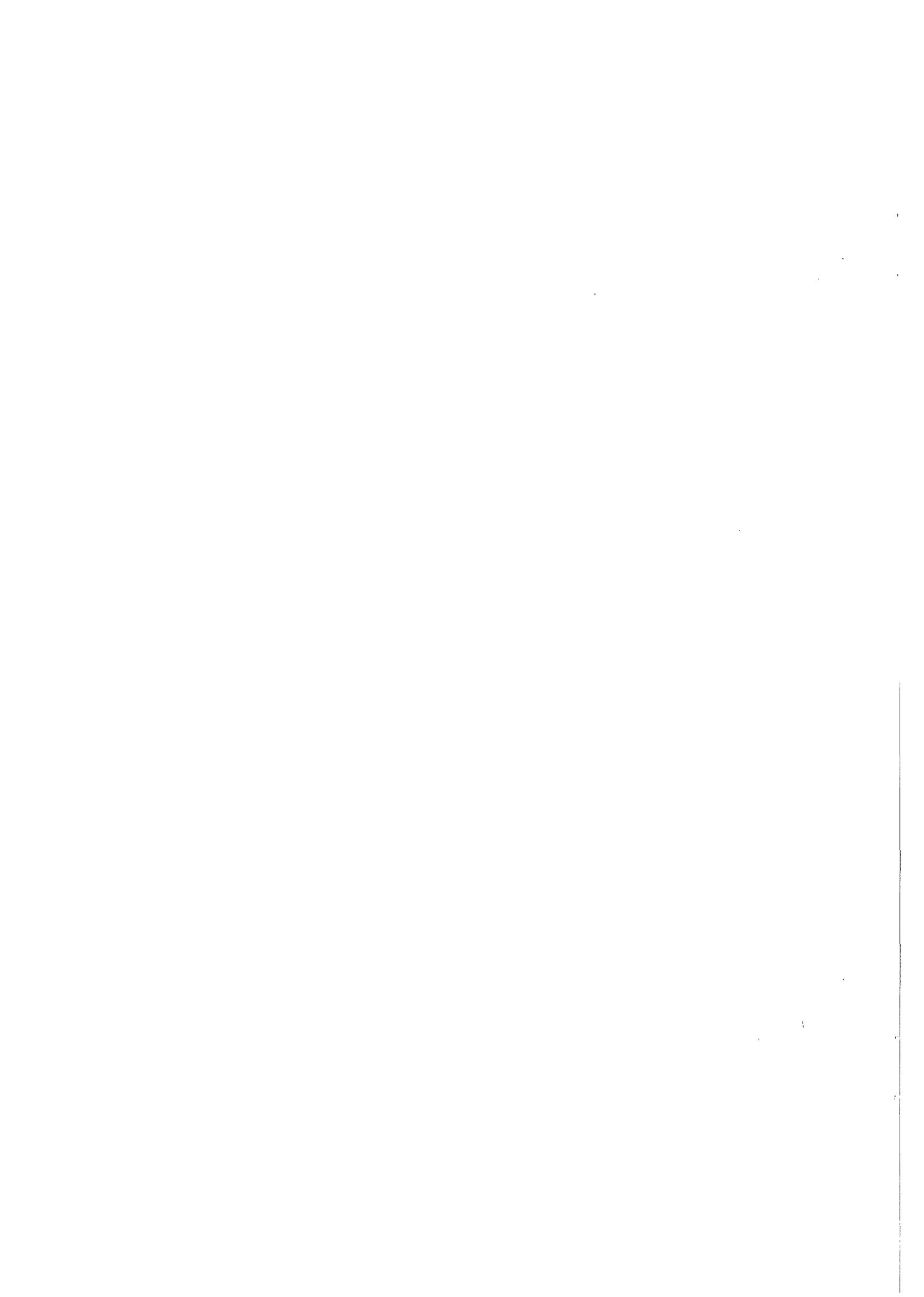
KFK 1849

PACT 48

PROJEKT ACTINIDEN

JAHRESBERICHT 1973

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe



Der vorliegende Jahresbericht beschreibt die Ergebnisse der Arbeiten, die von den Instituten und Abteilungen der GfK im Rahmen des Projektes Actiniden 1973 durchgeführt wurden.

This annual report describes the results of activities of the Actinide Project performed by Institutes and Departments of GfK in 1973.

Inhalt	Seite
ÜBERBLICK	1
BIOTECHNIK UND STRAHLENMEDIZIN	3
Energiequellen für biomedizinische Systeme	3
Risikobetrachtung über den Einsatz von ^{238}Pu in biomedizinischen System	4
1. Kontamination des Erdbodens	5
2. Emissionen	6
3. Plutonium-Aufnahme von Pflanzen	11
4. Plutonium im Wasser	12
5. Plutonium in der Luft	15
Transurane für biomedizinische Systeme	16
Bestrahlungstechnologie	16
Cermettechnik	16
1. Bestrahlungseinsatz HFR1	16
2. Bestrahlungseinsatz HFR2	41
Legierungstechnik	43
1. Bestrahlungsverhalten von ^{241}Am -Al-Legierungen	43
2. Herstellung von ^{237}Np -Al-Folien für Spaltfragment- dosimeter	43
3. Homogenitätsprüfungen an ^{237}Np -Al-Folien	44
4. Verwendung von ^{237}Np -Al-Folie in Spaltfragment- dosimetern	47
5. Nachbestrahlungsuntersuchungen von Am-Legierungen	50
Chemische Verfahrenstechnik	54
1. Prozeßentwicklung	54
2. Erprobung von Prozeßkomponenten für die TPL1- Anlage	66

	Seite
3. TPL1-Anlage	69
Technologie der Energiequellen	76
^{238}Pu -Kapseln für Herzschrittmacher	76
1. Überprüfung von Dosisleistung, Kontamination und Dichtheit	78
2. Festigkeitsuntersuchungen	78
3. Überprüfung des ^{238}Pu -Gehaltes von Herzschritt- macherkapseln	84
4. Neutronenemissionsmessungen an Herzschrittmacher- kapseln	85
5. In-Phantom Dosimetrie mit einer ^{238}Pu -Herzschritt- macherkapsel	90
Neutronenquellen in Therapie und Diagnose	102
Anwendung von Neutronenquellen	102
In-vivo-Aktivierungen	102
1. Theoretische Abschätzungen	103
 EXPLORATION VON ERZLAGERSTÄTTEN	 108
Lagerstättenvermessung	108
Analyse von unterirdischen Lagerstätten	109
Neutronenbohrlochsonde	109
1. Physikalische Grundlagen	109
2. Technische Entwicklung	128
3. Wirtschaftlichkeitsbetrachtungen	137
Röntgenfluoreszenz-Bohrlochsonde	148
1. Absolutbestimmung mit der Röntgenfluores- zenzmethode	148

	Seite
4. Weiterentwicklung	156
Bohrkernanalytik	157
1. Funktionsschema	157
2. Komponenten des Analysengerätes	158
Analyse von Oberflächenlagerstätten	160
Manganknollenanalysensystem	160
1. Physikalische Voraussetzungen	160
2. Meßtechnische Entwicklung	175
3. Technische Entwicklung	184
4. Wirtschaftlichkeitsuntersuchungen	195
Erzaufbereitung	199
Prozesskontrolle	199
1. Funktionsschema der Bestrahlungsanlage (Loop)	200
2. Komponenten des Loops	203
3. Aktivierungsgleichung	206
4. Experimentelle Ergebnisse	207
Messdatenverarbeitung	210
1. Spektrumsanalyse	210
2. Spektrumsinterpretation	217
Analysenservice	219
1. Gammaskpektrometrische Untersuchungen an ²³⁸ Pu-Proben	219
2. Neutronenaktivierungsanalytische Untersuchungen geologischer Proben	225

Am Bericht haben mitgearbeitet

H. Antoni	C.H.Leichsenring
W. Apenberg	A. Lubecki
G. Böhme	M. Mostafa
K. Böhnel	G. Müller
L. Bösch	R. Pejsa
K. Borcharding	R. Pepelnik
H. Braun	E. Piesch
F. Brüderle	E. Polifka
G. Burger	G. Potgeter
B. Burgkhardt	V. Prech
W. Bumiller	H. Ried
L. Buth	L. Röder
R. Döbele	W. Robel
H. Eberle	W. Ruf
H. Enderlein	L. Schmidt
I. Erbacher	J. Schmitz
U. Fanger	W. Scholtyssek
E. Gantner	G. Seiler
R. Gasteiger	W. Stegmaier
G. Gumb	A. Suppan
K. Hain	U. Tamm
G. Höhlelein	H. Werle
J. Hübener	W. Weinländer
W. Jung	M. Wilhelmi
H. Kempe	H. Wohnlich
G. Kunz	R. Wolf
J. Lange	H. Würz
W. Lange	

Ü b e r b l i c k

Das Projekt Actiniden (Leiter: Dr. G. Höhle) wurde am 1.1.1971 mit dem Ziel der "Entwicklung von Verfahren zur Herstellung und Anwendung der Actiniden" gebildet. Dabei wurden die in verschiedenen Instituten und Abteilungen seit 1967 laufenden Arbeiten auf dem Gebiet der Actinidenchemie zusammengefaßt und anwendungsorientierte Entwicklungsarbeiten neu in das Programm aufgenommen. Die Abwicklung sollte nach einem Stufenplan, der sich am erkennbaren Bedarf entsprechender Actinidenelemente orientierte, erfolgen. In der ersten Stufe, die die Jahre 1971 und 1972 umfaßte, sollte geprüft werden, inwieweit ein derartiger Bedarf sichtbar und welches Potential einer Anwendung vorhanden ist.

Die Arbeitsergebnisse (KFK 1456, 1544, 1656, 1788) und Studien der ersten Projektstufe zeigten, daß von einer Gewinnung der Transurane und dementsprechend vom Bau entsprechender Anlagen abgesehen werden kann. Lediglich die Verfahrensentwicklung zur Herstellung von biomedizinisch reinem ^{238}Pu zeigte ein genügend großes Potential, das eine Weiterbearbeitung rechtfertigte. Die aufgenommenen, anwendungsorientierten Arbeiten zeigten sich erfolgversprechend.

Ab 1.1.1973 konzentrieren sich die F u E-Arbeiten auf die Anwendung von Actiniden und kerntechnischen Methoden in den übergeordneten Bereichen "Verbesserung der Lebens- und Umweltbedingungen" und "Versorgung mit mineralischen Rohstoffen". Die Zielgebiete liegen damit nicht im Bereich der Kerntechnik. Aus ihr stammen jedoch die Methoden und Verfahren, deren gezielte anwendungsnahe Entwicklung Bestandteil des den Arbeiten der GfK zugrundeliegenden "4. Atomprogrammes" ist.

Entsprechend der Aufgabenstellung ist das Projekt in zwei Teilprojekte mit je mehreren Vorhaben gegliedert:

- Biotechnik und Strahlenmedizin
 - Risikobetrachtung über den Einsatz von ^{238}Pu in biomedizinischen Systemen
 - Transurane für biomedizinische Systeme
 - Technologie der Energiequellen
 - Neutronenquellen in Therapie und Diagnostik

- Exploration von Erzlagerstätten
 - Analyse unterirdischer Lagerstätten
 - Analyse von Oberflächenlagerstätten
 - Erzaufbereitung

Der vorliegende Bericht folgt dieser Gliederung.

3100 BIOTECHNIK UND STRAHLENMEDIZIN

3110 ENERGIEQUELLEN FÜR BIOMEDIZINISCHE SYSTEME

Die Forschung auf dem Gebiet der Unterstützung und dem Ersatz von Organfunktionen führte zunächst zum Herzschrittmacher und eröffnete Möglichkeiten der Entwicklung weiterer künstlicher Organe und Organhilfen. Ein Großteil derartiger implantierbarer biomedizinischer Geräte benötigt eine autarke Energieversorgung bis zu einigen Watt. Die Anforderungen hinsichtlich Wartungsfreiheit, Betriebssicherheit und langer Lebensdauer sind naturgemäß sehr hoch. Nukleare Energiequellen erfüllen solche Anforderungen, wobei ^{238}Pu aufgrund seiner physikalischen Eigenschaften für eine Verwendung im biomedizinischen Bereich besonders geeignet ist.

Eine sinnvolle Anwendung von biomedizinischen Stütz- und Ersatzsystemen ist nur bei uneingeschränkter Bewegungsfreiheit der Patienten möglich. Bei einer Verwendung von ^{238}Pu -Batterien bedeutet diese Forderung, daß sich radioaktive Substanzen ohne Möglichkeit einer direkten Kontrolle im Sinne der SSVO in der Umwelt bewegen. Zusammen mit der Möglichkeit von Unfällen der Träger, die im Extremfall zur Freisetzung von Radionukliden führen können, stellt das Einführen derartiger Systeme eine potentielle Gefahr dar. Es ist daher unabdinglich, mittels einer umfassenden Analyse die Möglichkeiten der Zerstörung der Sicherheitscontainments, der Freisetzung und Verbreitung des verwendeten ^{238}Pu zu erfassen. Diese Analyse muß letztendlich zu einer Aussage führen, welches Risiko das Einführen einer Vielzahl bestimmter ^{238}Pu enthaltender Geräte darstellt und ist damit eine wesentliche Voraussetzung für eine technologische Geräteentwicklung.

Die Entwicklung von Geräten, die mit Energie aus ^{238}Pu -Batterien versorgt werden, bedarf einer Betrachtung der Verfügbarkeit von ^{238}Pu in der für den Einsatzzweck notwendigen Reinheit. Dabei ist davon auszugehen, daß die Strahlenbelastung der Patienten und ihrer Umwelt so gering wie möglich gehalten wird. Eine geeignete Methode zur Herstellung von biomedizinisch reinem ^{238}Pu ist die Neutronenbestrahlung von ^{241}Am mit nachfolgender Lagerung und Aufarbeitung. Für die BRD besteht ein jährlicher Bedarf von ca. 2000 Kreislaufstütz- und ersatzsystemen.

Dies bedeutet, daß nach Markteinführung in den ersten 20 Jahren allein national ein Pu-Inventar im Werte von 2,5 Mrd. DM benötigt wird. Dieses Potential rechtfertigt, mit einer grundlegenden Entwicklung die prinzipielle Durchführbarkeit der ins Auge gefaßten Verfahren zu klären, zumal ^{238}Pu in der notwendigen Qualität von den derzeitigen Produzenten nicht angeboten wird.

Ein wesentlicher Sicherheitsfaktor ist die Umhüllung des ^{238}Pu , die darüberhinaus optimal der Batterie und den Bedingungen des Gerätes angepaßt sein muß. Eine behördliche Zulassung kann nur anhand von Nachweisen erfolgen, daß derartige ^{238}Pu -Kapseln international festgelegten und noch festzulegenden Standards entsprechen. Die Entwicklung von ^{238}Pu -Kapseln ist dementsprechend ein zentraler Punkt der Entwicklung autarker biomedizinischer Geräte.

3111 RISIKOBETRACHTUNG ÜBER DEN EINSATZ VON ^{238}Pu IN BIO-MEDIZINISCHEN SYSTEMEN

Das Programm für 1973 sah vor, zu beginnen, die bereits vorhandenen Daten über das Verhalten von Plutonium in Wasser, Erdreich, Atmosphäre sowie die Aufnahme und Anreicherung in Pflanzen und Tieren und Menschen zusammenzutragen.

Literaturstudie über die Verbreitungsmechanismen von freigesetztem Plutonium (1)

M. Wilhelmi

Pu-238-Batterien in Herzschrittmachern und in den in der Entwicklung befindlichen Blutpumpen machen es erforderlich, das Verhalten freigesetzten Plutoniums und dessen Ausbreitung vorherzusagen.

Im Rahmen dieser Risikobetrachtung wurde die Literatur auf die vorhandenen Erfahrungen über das Verhalten von freigesetztem Plutonium ausgewertet.

Die gravierendsten Emissionen waren: die Atombombenexplosionen von New Mexico, Nagasaki und auf dem Nevada-Testgelände, der Absturz von Atombomben tragenden Flugzeugen über Palomares und Thule und Unfälle in der Plutonium-Anlage von Rocky Flats. Im Einzelnen wird das Verhalten von freigesetztem Plutonium auf und im Erdboden, im Wasser und soweit es einen Pu-238-Unfall betrifft, auch in der Luft behandelt.

Obwohl neben physikalischen auch die toxischen Eigenschaften des Plutoniums-238 von denen des Plutonium-239 abweichen (2,3) werden in der vorliegenden Arbeit überwiegend Plutonium-239-Freisetzungsbatterien behandelt, da über Plutonium-238-Freisetzungsbatterien, bis auf das Verglühen einer Plutonium-238-Batterie in der Luft zu wenig Erfahrungen vorliegen.

Für die Isotopen-Batterien scheint die Verwendung von PuO_2 oder Cermeten mit hohem PuO_2 -Anteil besonders wegen der physikalisch-chemischen Eigenschaften, wie z.B. geringe Löslichkeit, Reaktionsträgheit, hoher Schmelzpunkt etc. geeignet.

Sicherheitsprogramme für Unfälle, an denen Plutonium beteiligt ist, wurden mehrfach ausgearbeitet; sie sind jedoch auf spezielle Gegebenheiten zugeschnitten, z.B. auf Unfälle im Labor (4), bei Feuer (5), beim Absturz eines soeben gestarteten Raumschiffes (6), mit $^{238}\text{PuO}_2$ -Batterien in Raketen (7,8) o.ä. Für den Fall eines Unglücks beim Tragen von Herzschrittmachern sind diese Programme nicht anwendbar.

1. Kontamination des Erdbodens

Auf dem Erdboden freigesetztes Plutonium kann in situ verbleiben, durch Resuspension auf der Oberfläche und in der Atmosphäre weiter verteilt werden oder in den Erdboden eindringen. Als Folge kann Plutonium von Pflanzen aufgenommen werden und so in die Nahrungsmittelkette gelangen (9).

Messungen über die Adsorption von Plutonium an Bodenproben wurden bereits 1957 von D.W. Rhodes durchgeführt (10). "In pH-Bereichen > 2

bildet Plutonium Polymere mit positiver Ladung und wird rasch vom Boden aufgenommen. Die Desorption des Plutoniums vom Boden ist mit wäßrigen Lösungen anorganischer Salze schwer durchführbar. An den Erdteilchen bildet sich eine hohe Plutonium-Konzentration mit geringer Neigung des Plutoniums, durch das Bodenprofil zu wandern". Das zunächst auf der Oberfläche abgelagerte Plutonium wird vom Erdboden aufgenommen. "Der tatsächliche Umfang des Eindringens hängt in erster Linie von der Art des Erdbodens ab, aber viele andere Faktoren, wie Niederschlagsmenge, chemische Form etc. spielen eine Rolle ..." (11).

Anhand der ausgewerteten Literatur kann angenommen werden, daß Plutonium vom Erdboden zwar aufgenommen wird, aber nur langsam in tiefere Schichten eindringt. B.F. Hajek kommt zu dem Ergebnis, daß das Plutonium in sehr geringem Maße wandert, in $2,4 \times 10^5$ Jahren ca. 8,5 cm so daß "mehrere Halbwertszeiten erforderlich wären, damit Oberflächen-Plutonium bis zur gegenwärtigen Grundwasserhöhe wandert" (12). Demgegenüber fanden C.W. Christensen und R.G. Thomas Pu noch in über 8 m (28 ft) Tiefe in einer Tuffsteinschicht (13). Offensichtlich war es durch Ritzen und Spalte so tief durchgesickert.

Das Löslichkeitsverhalten von Plutonium, welches für dessen Verteilung und Wanderung sowohl im Erdboden, wie auch im Wasser wesentlich ist, wurde in einer theoretischen Studie von W.L. Polzer untersucht (14). Er gibt an, unter welchen Bedingungen bestimmte Plutonium-Ionen besonders gut löslich sind, z.B. für Pu^{3+} , PuOH^{2+} , PuO_2^+ , $\text{PuO}_2(\text{OH})_3^-$ und daß CO_3^{2-} -Ionen wie auch organische Anionen die Löslichkeit des Plutoniums stark erhöhen.

2. Emissionen

2.1 New Mexico

Bodenproben und Pflanzen im Gebiet von Zentral- und Nordost-New Mexico, das durch Fallout des ersten Atombombentests am 16.7.45 kontaminiert ist, wurden zu verschiedenen Zeitpunkten auf Pu untersucht (15,16).

Mengen bis zu $0,7 \text{ mg/m}^2$ ($0,07 \text{ mg/Quadratfuß}$) wurden 88 Meilen nordöstlich der Detonationsstelle gefunden. Die größte Flächenbelegung mit $15,38 \text{ mg/m}^2$ ($1,47 \text{ mg/Quadratfuß}$) wurde 28 Meilen nordöstlich der Detonationsstelle gefunden. In 3 Meilen südlich der Detonationsstelle gesammelten Proben wurde kein Plutonium gefunden.

2.2. Nagasaki

24 Jahre nach der Atombombenexplosion am 9. August 1945 etwa 500 m über dem Stadtgebiet von Nagasaki wurden im Juli 1969 Bodenproben an verschiedenen Stellen im Umkreis bis zu 4,4 km vom Zentrum der Explosion untersucht (17,18). Diese Proben enthielten noch immer zwischen 1 bis $38 \text{ mCi Pu-239/km}^2$. Die höchste Konzentration wurde in Nishiyama ca. 2,8 km östlich des Explosionszentrums gefunden. Der am Tage der Explosion aus Westen wehende Wind ist für die hohe Flächenkontamination in diesem Gebiet verantwortlich.

2.3 Nevada Testgelände

Bereits 1970 wurde von der "Nevada Applied Ecology Group" ein Programm begonnen, welches das Schicksal des bei den Tests freigesetzten Plutoniums verfolgen soll (19).

Dieses "Plutonium Environmental Studies Program" arbeitet spezifisch mit dem Zweck, Umgebungs- und Strahlen-Gesundheitsprobleme im Zusammenhang mit der Plutonium-Kontamination auf dem Nevada-Testgelände und dessen Umgebung zu identifizieren und zu bestimmen. Zunächst liegt die Betonung auf der Normung analytischer Methoden, der Abgrenzung kontaminierter Flächen, Fragen der Aufwirbelung und Umverteilung, Nahrungsmittelketten-Transport und ökologischen Auswirkungen.

Um die Plutonium-Verteilung in der Umgebung des Nevada-Testgeländes zu bestimmen und festzustellen, ob Plutonium durch natürliche Vorgänge wandert, ob Menschen diesem Plutonium ausgesetzt sind oder werden können, werden Untersuchungen durchgeführt (20,21).

Plutonium wurde in den meisten Fällen nur in der obersten Schicht bis zu 3 cm Tiefe gefunden. Die gefundenen Werte reichen von 130 mCi/km² bis Untergrund.

Der Erdboden in der Nähe des Nevada Testgeländes ist vulkanischen Ursprungs, trocken und steinig. Über die Niederschlagsmenge wird nichts ausgesagt.

2.4 Palomares

Nach dem Aufprall auf den Erdboden von zwei Atombomben aus einem verunglückten Flugzeug wurden am 16.1.1966 Plutonium-Mengen von ~500 µg/m² im Umkreis bis 80 m an einer Stelle bzw. bis 65 m an der anderen Stelle gefunden (22). Die Windgeschwindigkeit zur Zeit des Unfalls betrug ca. 56 km/h (30 Knoten).

Zur Beseitigung des Plutoniums wurde die oberste Erdschicht in diesen Gebieten abgenommen und in die USA transportiert; die an den Dekontaminationsarbeiten beteiligten Personen wurden untersucht (23).

2.5 Thule

Beim Absturz eines mit vier Atombomben beladenen Flugzeugs am 21.1.1968 wurden alle vier Bomben beim Aufprall zerstört und einige Kilogramm Plutonium freigesetzt (22,24). Das Flugzeug stürzte auf das zugefrorene Meer. Der größte Teil des Plutoniums konnte auf einer Fläche von ca. 150 m x 700 m, auf der auch die Bombenreste und Flugzeugteile lagen, wiedergefunden werden. Diese Teile sowie der stark kontaminierte Schnee wurden eingesammelt und in die USA transportiert. Wasser, Seegrund, Muscheln, Krebse, Zooplankton und Schneefüchse wurden auf ihren Plutoniumgehalt untersucht (Abb. 3111.1, (24)).

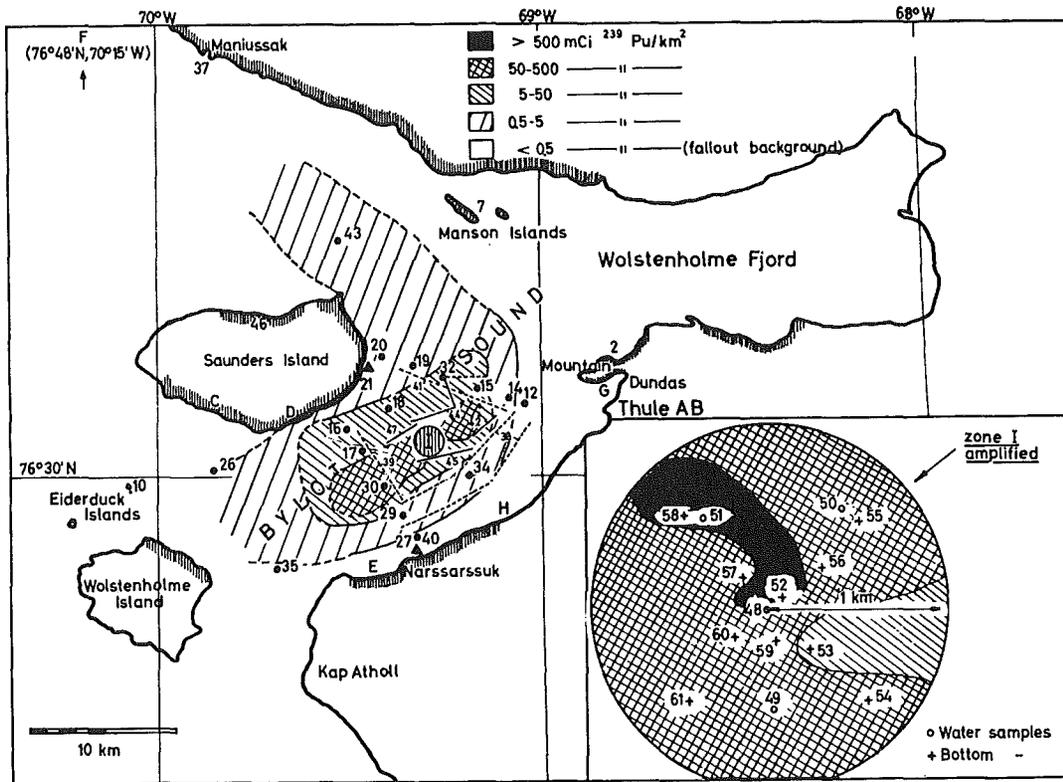


Abb. 3111.1: Die Pu-239-Niveaus auf dem Meeresgrund von Thule im August 1968 (aus 24)

Um die geographische Verteilung und die Wanderung des Plutoniums zu verfolgen, führte A. Aarkrog 1970 erneute Untersuchungen durch (25). Dabei zeigte sich ein verringerter Plutonium-Gehalt in allen Proben, doch lag der Gehalt noch merklich über dem Falloutriveau. Das Plutonium war ca. 10 cm tief in den Meeresboden eingedrungen und bis zu einem Abstand von 30 km von der Aufprallstelle noch nachweisbar. Die noch vorhandene Gesamtplutoniummenge in der Umgebung von Thule wird auf 20 Ci = 320 g geschätzt.

2.6 Rocky Flats

Die Berichte über die Plutonium-Kontamination in der Nähe des Rocky Flats Geländes geben stark unterschiedliche Meinungen wieder.

Nach einem Feuer am 11.5.1969 in der Anlage konnten 99 % des Plutoniums

wiedergefunden werden (26). Über die absolute Menge Plutonium, die in den Brand verwickelt war, wird nichts gesagt.

Nach diesem Unfall wurden in der Umgebung der Anlage Erd- und Luftproben auf ihren Plutoniumgehalt untersucht. Die im Umkreis bis zu 40 Meilen von der Anlage an 33 Stellen entnommenen Erdproben enthielten Plutonium-Ablagerungen bis zu 2000 mCi/km^2 ; doch nahm diese hohe Konzentration mit zunehmender Entfernung von der Anlage stark ab (Abb. 3111.2).

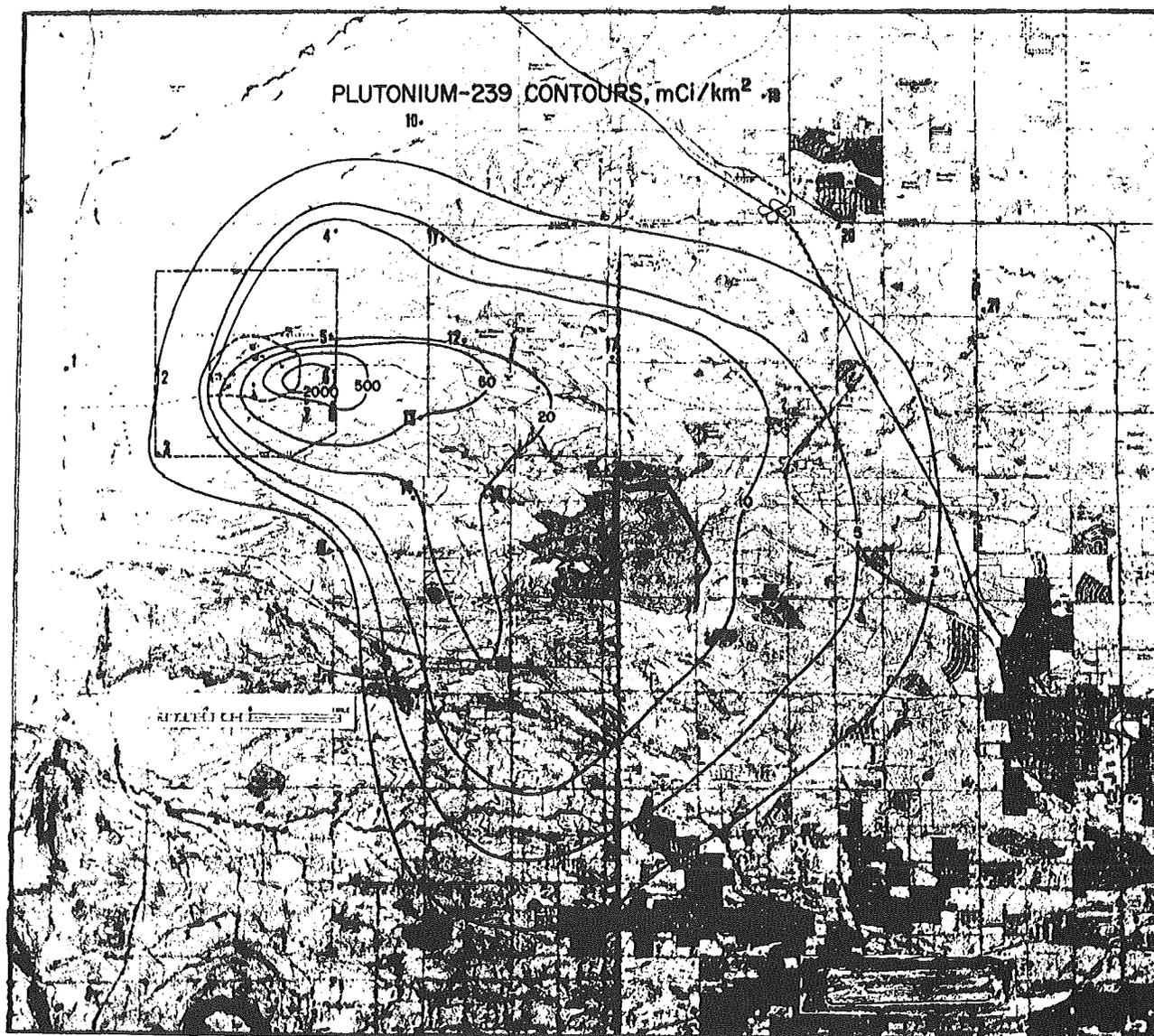


Abb. 3111.2: Dow Rocky Flats Plutonium-Anlage und Umgebung mit eingezeichneten Probenahmestellen und Isodosenlinien

Die Verteilung im Gelände entspricht der in dieser Gegend während der Jahre 1953 bis 1970 gemessenen durchschnittlichen Windrichtung aus Nord- bis Südwest. Am 11.5.1969 wehte der Wind jedoch aus Nordost bis Ost. Es mußte deshalb angenommen werden, daß die Plutonium-Verseuchung nicht auf diesen Brand zurückzuführen ist, sondern entweder auf einen Brand, bei dem am 11.9.1967 22 kg Plutonium in einem Handschuhkasten verbrannten (27) und "Geringe Kontamination der Vegetation festgestellt wurde" (28), oder auf leckende Fässer, die mit Plutonium verunreinigtes Öl enthielten. Diese Fässer lagerten von 1958 bis 1968 in der Südostecke der Anlage. Das erste Leck wurde 1964 entdeckt. Außerdem ist auch die Möglichkeit nicht auszuschließen, daß ständig geringe Mengen Plutonium mit den Abgasen ausgetreten sind, doch dürfte diese Ursache nicht für die so hohe Plutonium-Kontamination verantwortlich sein. H.L. Volchok et al. untersuchten das "respirable" Plutonium in dem verseuchten Gelände und fanden 1 1/2 Meilen östlich 19 fCi/m^3 , mehr als 30 % der m.p.c x für lösliches Plutonium, bezogen auf Knochen als kritisches Organ" (29). Die geologischen, seismischen, hydrologischen, meteorologischen und ökologischen Gegebenheiten des Gebietes werden in (30) beschrieben.

Plutonium wurde bis zu einer Tiefe von 13 cm im Erdboden nachgewiesen, wobei die Eindringtiefe, offensichtlich in Abhängigkeit von der Chemie des Bodens sehr variiert.

3. Plutonium-Aufnahme von Pflanzen

Das Plutonium aus dem Erdboden kann über Pflanzen oder Tiere in die Nahrungsmittelkette gelangen. Die Aufnahmefähigkeit der verschiedenen Pflanzen für Pu-239 ist unterschiedlich und außerdem noch von verschiedenen Faktoren abhängig, wie z.B. Art des Bodens, chemische Form des Plutoniums, Teilchengröße etc.

H. Nishita et al. untersuchten die Aufnahme radioaktiver Zerfallsprodukte durch Nutzpflanzen und die Verteilung der Isotope innerhalb der Pflanzen (31). Sie fanden, "daß die relative Größenordnung der Aufnahme von Spaltprodukten und Plutonium durch Pflanzen aus kontaminiertem Erdboden in der Reihenfolge Sr-89/90 > J-131 > Ba-140 > Cs-137, Ru-106, Ce-144, Y-91, Pm-147, Zr-95, Nb-95 > Pu-239 abnimmt".

Den Einfluß der Pflanzenart verdeutlichen Versuche von W.A. Thomas, die zeigen, daß Bohnen, die auf Curium-haltigem Boden gewachsen sind, erhebliche Aktivität zeigten, während Gras unter gleichen Bedingungen gezogen, keine Aktivität zeigte (32,33). Das stimmt sowohl mit Beobachtungen von S.L. Cummings und L. Bankert überein, nach denen das Verhältnis der Pu-Aktivität in Hafer, der auf verschiedenen Pu-haltigen Böden gezogen worden war zu der des Bodens 10^{-4} bis 10^{-6} betrug (34), wie auch mit solchen von W. Bliss und L. Dunn, die im Zusammenhang mit Untersuchungen auf dem Nevada-Testgelände in der auf Pu-verseuchtem Boden gewachsenen Gerste kein Pu fanden (35).

E. Romney et al. untersuchten die Plutonium-Aufnahme durch Klee im Verlauf von 5 Jahren. Die aufgenommene Plutonium-Menge nahm von Jahr zu Jahr zu. Dabei können einmal das sich weiterentwickelnde Wurzelwerk zum anderen aber auch Chelate eine Rolle spielen.

Eine steigende Aufnahme von Spaltprodukten und Plutonium durch verschiedene Pflanzen mit abnehmendem pH-Wert der Nährlösung konnten J.H. Rediske et al. beobachten (36).

Der Einfluß von Chelaten auf die Aufnahme von Transuranen durch Pflanzen wurde mehrfach untersucht. So schreiben z.B. V.Q. Hale und A.Wallace daß DTPA die Pu-239-Aufnahme durch Pflanzen vermehrt, während EDDHA nur geringen Einfluß hatte (37). Nach E.M. Romney erhöhte DTPA die Aufnahme von Pu-239 durch Luzerne wesentlich, während EDDHA wiederum weniger wirksam war (38).

4. Plutonium im Wasser

Nach J.V. Panesko ist das Verhalten von trockenem Plutoniumoxid-Pulver unter Wassereinwirkung abhängig von der Stoßkraft der Wassertropfen (39). In jedem Fall, auch unter der Einwirkung des fein versprühten Wassers einer Sprinkler-Anlage, verspritzt zunächst das Pulver, dann bildet sich in der obersten Schicht ein Sumpf. Durch diesen Sumpf dringt Wasser nur noch langsam tiefer in das Pulver ein. Wird dagegen das Pulver ins Wasser geschüttet, sinkt es sofort ab oder bildet, wenn es sich um sehr feines Material handelt, eine Suspension. Eine Zusammenfassung der Arbeiten bis 1970 über das Schicksal des Plutoniums

im Ozean, sowohl in seichtem Küstenwasser, wo es sich im Schlamm und Sand anreichert, als auch in tiefen Wasserschichten wurde von V.E. Noshkin, K.M. Wong et al. gegeben (40,41). Die Gesamtmenge des im Meer gemessenen Plutoniums stimmt, jeweils für denselben Breitengrad, gut mit dem aus Erdproben errechneten Fallout überein. Die Autoren schließen aus diesen Ergebnissen, daß Plutonium als ein ausgezeichneter Fallout-Indikator angesehen werden kann.

Untersuchungen über das Verhalten von PuO_2 in Meerwasser wurden unter natürlichen, und auch unter Laborbedingungen von S.H. Mikhail und D.A. Kubose durchgeführt (42). Dabei wurde das Löslichkeitsverhalten bei verschiedenen Temperaturen und Drucken und bei unterschiedlichen Salzgehalten getestet. Bei den Untersuchungen unter natürlichen Bedingungen wurde festgestellt, daß 70 % der PuO_2 -Partikel nach 5 Monaten von aufgewachsener mariner Kruste umhüllt waren (43). Dadurch wird voraussichtlich der Grad der Löslichkeit der Pu-Aktivität aus den Teilchen vermindert, andererseits stellt sich die Frage, ob sich die Wahrscheinlichkeit, daß die Partikel in die Meeres-Nahrungsmittelkette aufgenommen werden, erhöht. Nach G.P. Dix und T.J. Dobry ist die Auflösung von Plutonium in wäßriger Umgebung abhängig von (44):

- 1) der Größe der Plutonium-Oberfläche
- 2) der chemischen Zusammensetzung
- 3) der Natur der umgebenden Lösung.

Theoretische (14) und Laboruntersuchungen (45) berücksichtigen besonders das Verhalten von Plutonium in Wasser in Abhängigkeit vom pH-Wert und der Plutonium-Konzentration, vom Ionen-Gehalt und dem Einfluß von Komplex-Agentien. Ebenso wurden Untersuchungen über die Absorption von PuO_2 an das Material des Meeresbodens durchgeführt.

Für die Unfallstelle Thule wurde der Pu-Gehalt des Meerwassers an und in der Nähe der Absturzstelle untersucht (24) (vergl. Abb. 3111.1). Ein Unterschied des Plutonium-Gehaltes im Wasser nahe der Oberfläche gegenüber dem im Wasser in Bodennähe konnte nicht gefunden werden. Der Hauptanteil des Plutoniums hat sich auf dem Meeresboden abgelagert, wo auf einer elliptischen Fläche von ca. 30 km^2 ungefähr 3 Ci Plutonium angenommen werden. Tiere und Pflanzen, die mit dem Meeresboden

in Kontakt kommen, oder sich von mit dem Meeresboden in Kontakt kommenden Lebewesen ernähren, zeigen einen höheren Plutoniumgehalt als diejenigen, die im freien Meerwasser leben. Aus diesen zur Untersuchung der Nahrungsmittelkette (Abb. 3111.3) dienenden Analysen wurde geschlossen, daß "keine Proben Plutoniummengen enthielten, die als gefährlich angesehen werden können für in der Umgebung von Thule oder in anderen Teilen Grönlands lebende Menschen oder höhere Tiere" (24).

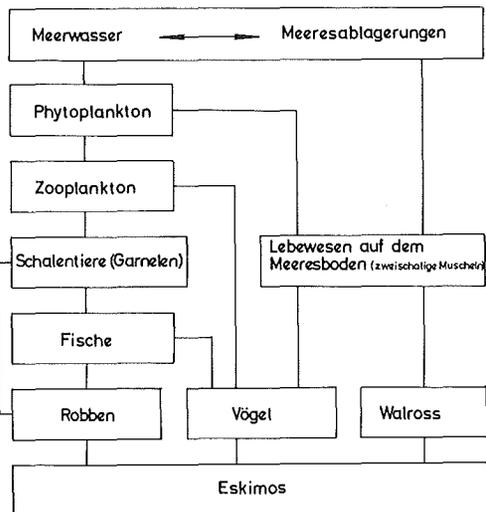


Abb. 3111.3:

Nahrungsmittelkette in arktischem Meerwasser (aus 24)

Von verschiedenen Algen (z.B. *Gelidium* sp., *Zoneira* sp., *Sargossum* sp.) und anderen Meerespflanzen konnte gezeigt werden, daß sie Plutonium aus dem Meeresboden in hohem Maße aufnehmen (37). Besonders Braunalgen (*Fucus* und *Laminaria*) scheinen empfindliche Plutonium-Indikatoren des Meerwassers zu sein (24).

Ebenso nehmen V.E. Noshkin et al. aufgrund ihrer Untersuchungen an, daß Muscheln ausgezeichnete Plutonium-Indikatoren sind (46). Sie fanden, daß im Muschelfleisch weniger Plutonium enthalten ist, als in den Schalen. Auch in den Skeletten von Fischen wurde mehr Plutonium gefunden, als im Fleisch. In knorpeligen Skeletten von Tieren, die unter ähnlichen Bedingungen leben, wie solche mit verkalkten Skeletten war weniger Plutonium enthalten. Dies bestätigt Untersuchungen von E.E.Ward, daß bei Hummern, die man in Pu-239 angereichertes Wasser gesetzt hatte, der Hauptplutoniumanteil sich in den Schalen ablagert, während

im Fleisch und den Weichteilen wesentlich geringere Mengen nachzuweisen waren (47). Diese Befunde sind wichtig im Hinblick auf die Plutonium-Aufnahme in die Nahrungsmittelkette (s. Abb. 3111.3).

5. Plutonium in der Luft

Über das Verhalten von Plutonium in Luft sind zahlreiche Veröffentlichungen bekannt. Durch Verfolgen des Pu-238 aus dem SNAP-9A Unfall, bei dem eine Pu-238-Isotopenbatterie verglühte, konnte das Verhalten des Plutoniums in höheren Luftschichten sehr genau beobachtet werden. Die Wahrscheinlichkeit einer Freisetzung von Plutonium aus Herzschrittmachern in höheren Luftschichten ist gering, deshalb soll dieses Problem hier nicht weiter untersucht werden. In bodennahe Luftschichten jedoch kann Plutonium durch Feuer und Überhitzungs-Unfälle, wie auch durch Resuspension gelangen.

J. Mishima und L.C. Schwendiman untersuchten die Freisetzung von Plutonium in verschiedener chemischer Form beim Erhitzen bis 1000°C (48,49) und geben die Gewichtsanteile des Plutoniums an, die nach dem Erhitzen in der Luft verbleiben. Die Art der Plutonium-Verbindung, Teilchengröße, Geschwindigkeit des Luftstroms und die Temperatur beeinflussen die Menge des in der Luft verbleibenden Plutoniums.

Am 21. April 1964 verglühte, wahrscheinlich in 46 km Höhe über dem Indischen Ozean, eine Pu-238 betriebene Batterie, die ca. 17 kCi, das sind ca. 1 kg Pu-238 enthielt. Es wird angenommen, daß die Batterie völlig zerstört wurde, das Pu-238 verbrannte und die kleinen Partikel verstreut wurden (50). Untersuchungen zur Lokalisierung des Hauptanteils und über das Verhalten des Plutoniums in Abhängigkeit von den Jahreszeiten wurden durchgeführt. Aufgrund dieser Untersuchungen werden ca. 75% des Pu-238 aus SNAP-9A in der Stratosphäre des südlichen und nur ca. 20 % in der Stratosphäre der nördlichen Hemisphäre vermutet (50). Die Verteilung des Pu-238 stimmt überein mit einem Modell, das die Zirkulation über der nördlichen und südlichen Halbkugel in der Stratosphäre in Abhängigkeit von den Jahreszeiten beschreibt.

Die Ablagerung von Pu-238 auf dem Erdboden wird aus Beobachtungen des Pu-238/Pu-239+240-Verhältnisses ermittelt. Es wird angenommen, daß sich Mitte 1970 bereits 95 % dieses Pu-238 auf dem Erdboden abgelagert hatten.

3112 TRANSURANE FÜR BIOMEDIZINISCHE SYSTEME

3112.1 BESTRAHLUNGSTECHNOLOGIE

Ziel des Vorhabens ist die Bereitstellung einer Technologie zur Herstellung von ^{238}Pu über Neutronenbestrahlung aus ^{241}Am .

Das Programm 1973 sah vor, die Bestrahlungen im BR2 (Mol) und HFR (Petten) weiterzuführen. Schwergewicht sollte auf der Auswertung der Bestrahlungsvorhaben in den Heißen Zellen liegen.

3112.1 a CERMETTECHNIK

Nachbestrahlungsuntersuchungen von Am-Cermet-Stäben

H. Enderlein, R. Pejša

1. Bestrahlungseinsatz HFR 1

1.1 Demontage und visuelle Kontrolle

Das Zircaloy-Führungsrohr des Einsatzes war über die gesamte Länge aufgerissen, die maximale Spaltbreite betrug 2 cm im oberen Drittel (Abb. 3112.1). Im Spalt waren die völlig korrodierten Reste der ALMg3-Stabhalterungen sichtbar. Die Mantelfläche des Führungsrohres erschien dunkel, die Oberflächentemperatur erreichte ohne Kühlung 140°C .

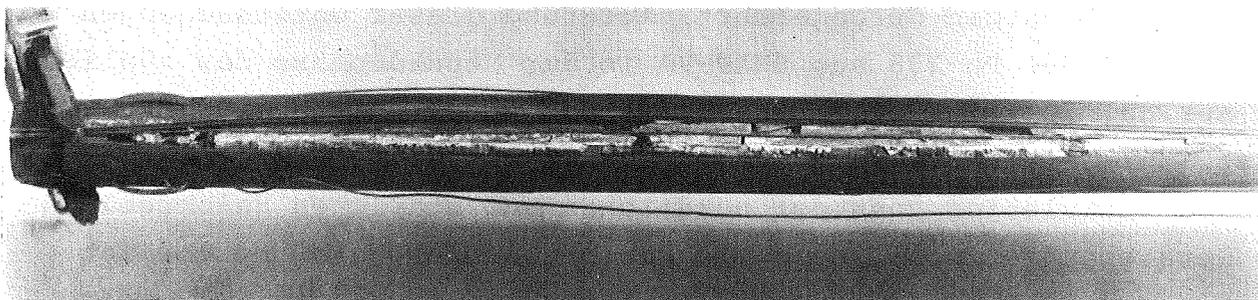


Abb. 3112.1: Aufgerissenes Führungsrohr, im Inneren korrodierte Reste der Stabhalterungen.

Die Prüflingsbündel ließen sich nur mit Schwierigkeiten ausbauen. Die Prüflinge selbst waren unbeschädigt, die Mantelflächen zeigten rotbraunen Belag, durch helle Flecken unterbrochen (Abb. 3112.2 und 3112.3). Er war nicht abwischbar, ließ sich jedoch mit einer Drahtbürste entfernen.

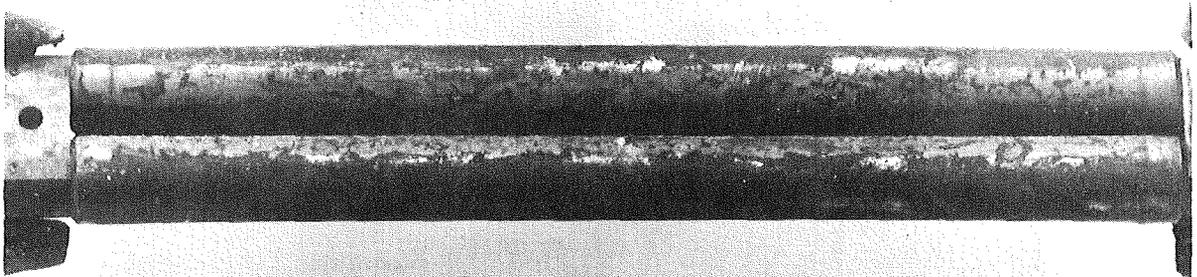


Abb. 3112.2: Oberes Prüflingsbündel HFR 1



Abb. 3112.3: Prüfling 1 aus dem mittleren Bündel

1.2 Dimensionskontrolle der Prüflinge

Die mittleren Durchmesser der Prüflinge lagen zwischen 11,97 und 12,00 mm, die bestrahlungsbedingten mittleren Durchmesser-Vergrößerungen betragen bei Berücksichtigung der Meßtemperatur 0 bis 30 μm . Über die gesamte Länge der Hüllrohre waren starke Ovalitäten von 1300 bis 1750 μm zu verzeichnen (Abb. 3112.4 und 3112.5). Die Prüflingslängen lagen zwischen 158,0 und 158,3 mm.

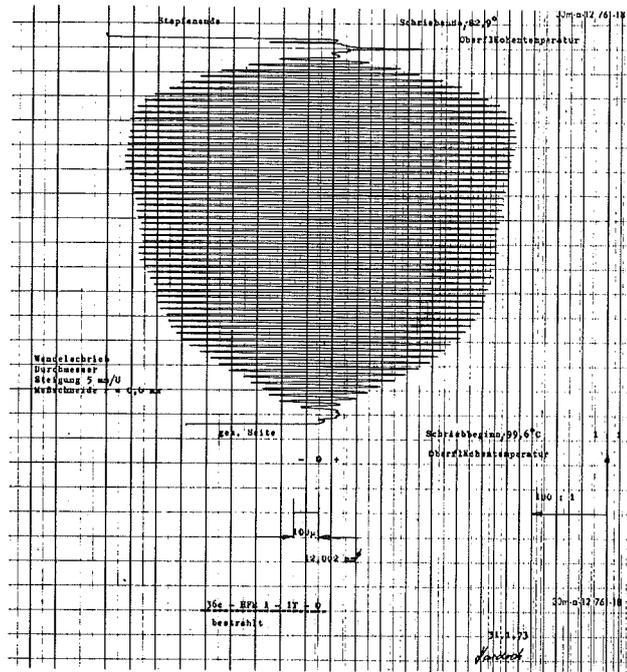
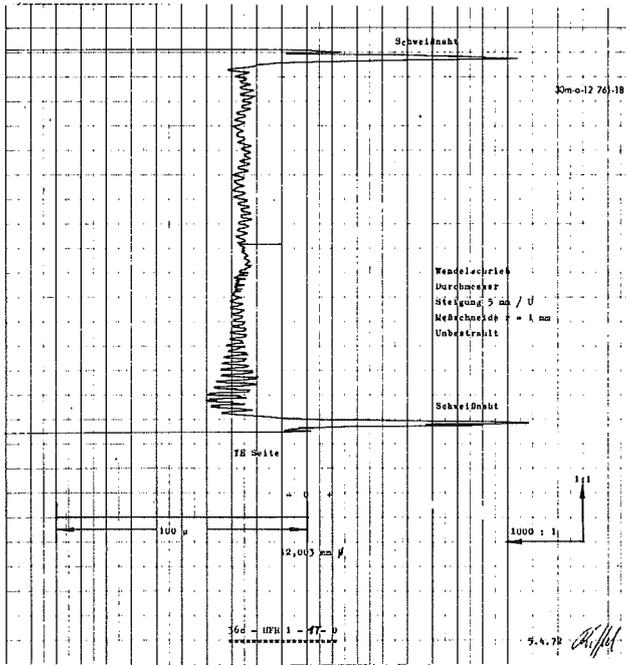


Abb. 3112.4:

Abb. 3112.5:

Wendelschriebe des Durchmessers von Stab 1T vor und nach Bestrahlung. Starke Zunahme der Ovalität, ausgedrückt durch die Amplituden der Schriebe, bis zu den Endstopfen.

1.3 Oberflächentemperatur, γ - und n-Dosisleistung

Die Oberflächentemperaturen in Prüflingsmitte stellten sich in ca. 25 min auf Werte zwischen 43°C (Prüfling 1, mittleres Bündel) und 94°C ein (Prüfling 4T, unteres Bündel). An den Prüflingsenden lagen sie um bis zu 10° niedriger.

Die γ -Dosisleistung, gemessen an Prüfling 1 in 1m Abstand, betrug 100 mrem/h hinter 5cm Blei, 1 mrem/h hinter 15cm Blei. Die Neutronen-Dosisleistung lag bei 2 mrem/h hinter 5cm Polyäthylen, bei 1 mrem/h hinter 15 cm PE.

1.4 γ -Spektroskopie

Die Integralscans von 5 Prüflingen geben neben dem Verlauf des Neutronenflusses im Reaktor die Lagen der 10 AmAl-Zylinder markant wieder, an den Endstopfen verursachen im Hüllmaterial enthaltene Co 60-Anteile hohe Impulsraten (Abb. 3112.6). Wesentliche Inhomogenitäten

innerhalb der Tabletten sind nicht erkennbar. Die Impulsraten steigen über die Prüflingslängen im unteren Bündel um den Faktor 1,15 nach oben, im mittleren und oberen um 1,5 bzw. 2,2 nach unten.

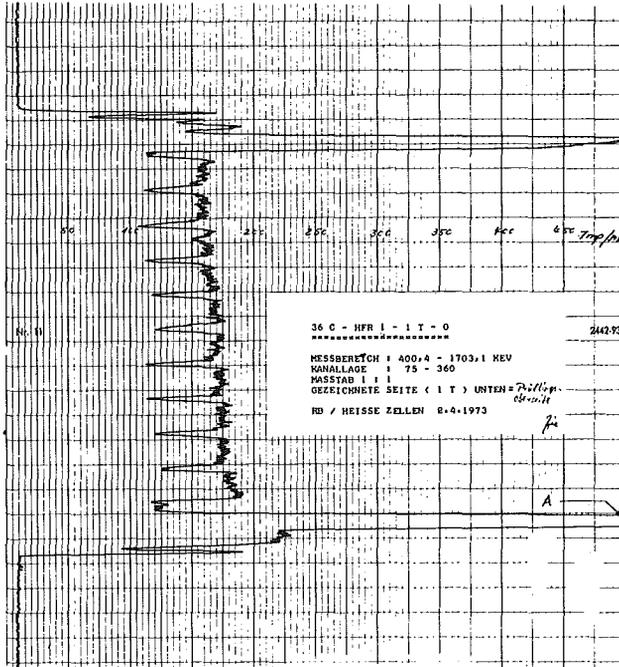


Abb. 3112.6:

Energie-integrales γ -scan des Prüflings 1T, Prüflingsoberseite unten.

In den in Tablettenmitte aufgenommenen Energie-Spektren treten die Energien der Nuklide Zr 95-Nb 95, Ru 103, Ce 144 und Co 60 stark hervor.

1.5 Röntgenprüfung

Radiografien der drei unteren Prüflinge mit einer 400 kV-Röntgenröhre zeigen kontrastreich die AmAl-Zylinder der Tabletten gegen die Al-Hülsen und -Stirnplatten, das Zentral-TE ist erkennbar. Tablettenrisse oder andere Besonderheiten sind nicht sichtbar (Abb. 3112.7).

Abb. 3112.7:

Radiografie des Prüflings 1 T.

1.6 Frei Spaltgase und freies Volumen

In den sieben auf freigesetzte Spaltgase untersuchten Prüflingen wurden Mengen an He von 1,7 bis 14,7 Ncm³, an H₂ von 0,07 bis 4,53 Ncm³, an Kr von < 10 bis 55,4 Nmm³ gemessen; die maximalen Gasmengen lieferte Prüfling 1 (mittleres Bündel). Die experimentell ermittelten, freien inneren Volumina lagen zwischen 1,82 und 1,89 cm³ (rechnerischer Wert einschließlich Porenvolumen 1,82 cm³).

1.7 Untersuchungen an einzelnen Zylindern

Die Tabletten ließen sich erst nach mitunter mehrmaligem Längsschlitzten der Edelstahl-Hüllrohre ausbauen, teilweise blieb die Al-Hülle der Pellets am Hüllrohr hängen (Abb. 3112.8).

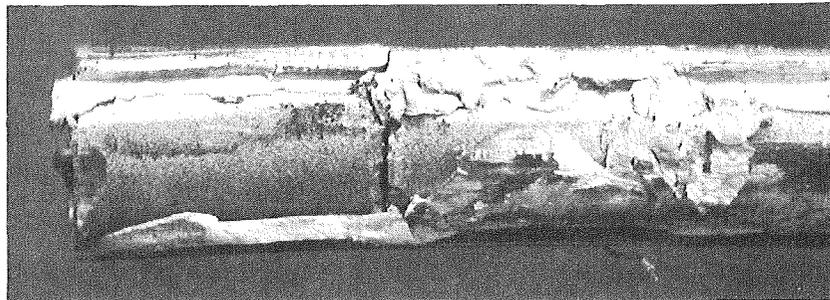


Abb. 3112.8: Die beiden unteren AmAl-Zylinder des Stabes 2T. Der Al-Mantel blieb beim Ausbau teilweise an der Edelhülle hängen.

Die beidseitig eingebauten Flußdetektoren wurden demontiert und in die Warteschlange zur Auswertung eingereiht. Die Durchmesserbestimmung der Pellets aus den drei unteren Prüflingen lieferte Werte zwischen 9,01 und 10,00 mm und Konizitäten einzelner Pellets bis zu 240 μm . Diese Ergebnisse sind in Anbetracht der zum Teil sehr deformierten Oberflächen mit Vorbehalt zu sehen. Auf die Längenmessung wurde verzichtet.

4 Tabletten aus den unteren Stäben wurden zur Gasbestimmung gemahlen und aufgelöst. Die gesamte He-Freisetzung betrug 11,3 bis 16,9 $\text{Ncm}^3/\text{g Am}$; die beim Mahlen freigesetzte Teilmenge war uneinheitlich, wegen dem nicht befriedigenden Mahlvorgang wurde auf diesen Untersuchungsschritt schließlich verzichtet. Krypton und Xenon lagen unter den Nachweisgrenzen von 10 bzw. 30 Nmm^3 .

Die Helium-Freisetzung beim Glühen von drei Pellets aus den unteren Stäben bei Temperaturen zwischen 450 und 610 $^{\circ}\text{C}$ betrug 6,7 bis 8,2 $\text{Ncm}^3/\text{g Am}$ ohne Relation zwischen Temperatur und Menge. Auch die dabei gemessenen Durchmesseränderungen waren sehr uneinheitlich, sie lagen zwischen -800 und +400 μm .

Zur chemischen Analyse in IRCH wurden 5 ganze und 3 in Teilbereiche zertrennte Tabletten aufgelöst und ausgeschleust, 12 Tabletten wurden zur weiteren Untersuchung zu IHCh bzw. zur TU München transportiert, 3 Tabletten zur Untersuchung ihres Langzeitverhaltens in Stahlkapseln eingeschweißt.

Nach Abzug der 6 metallografisch untersuchten Tabletten liegen die 48 restlichen bereit für IHCh.

2. Metallografische Untersuchung

Für die metallografische Untersuchung aus dem Bestrahlungsversuch HFR1 waren je zwei Proben (Pellets) aus den Prüflingen T 1, T 2 und T 4 vorgesehen. Ausgewählt wurden die Pellets 5 als Längsschliffe und die Pellets 6 als Querschliffe.

2.1 Metallografischer Befund

Prüfling T 1 - Pellet 5 - Längsschliff

Der Schliff liegt nicht in der Mitte der Probe. Deshalb ist auch die Bohrung für die Thermoelemente nicht sichtbar. Die auf der Übersichtsaufnahme sichtbaren Risse (Bild 5-1/2) sind in unmittelbarer Nähe der Bohrung. Das Pellet liegt in der Hülle nicht ganz symmetrisch, der entstandene Spalt beträgt bis ca. 300 μm . Die AmO_2 Verteilung zeigt an dieser Probe eine leichte Unhomogenität. Stellenweise sind auch einzelne AmO_2 -Partikel von einer Größe bis zu 40 x 200 μm sichtbar - auch auf der Autoradiografie-Aufnahme Bild 5-1/1 -. Diese sind mit kleineren und größeren Poren durchsetzt, die höchstwahrscheinlich während der Bestrahlung entstanden sind. Die Al-Körner der Matrix weisen eine ziemlich regelmäßige Größe von ca. 40 μm auf (Bilder 5-1/3, 1/4, 1/5).

Prüfling T 1 - Pellet 6 - Querschliff

Die Übersichtsaufnahme (Bild 6-1/2) zeigt die Ovalität der Probe und die Deformation der Thermoelement-Bohrung. Der Ausschnitt auf der Oberfläche entstand bei der Demontage des Prüflings. In der Nähe der Bohrung sind auch hier - wie bei der vorangegangenen Probe - kleine Risse sichtbar.

Eine Anhäufung von AmO_2 , die auch auf der α -Autoradiografie-Aufnahme (Bild 6-1/1) identifiziert werden kann, wird auf den Detailaufnahmen (Bilder 6-1/3 und 1/4) dokumentiert. Es zeigte sich, daß in einem Hohlraum in der Al-Matrix größere Stücke von AmO_2 eingelagert sind. Interessant ist die andere Farbtönung der Randzone an manchen Partikeln, die möglicherweise auf eine Entmischung der neu entstandenen Nuklide hindeuten kann.

Prüfling T 2 - Pellet 5 - Längsschliff

Die Übersichtsaufnahme (Bild 5-1/2) zeigt den Schnitt durch die Mitte des Pellets. Das Target-Material liegt über der ganzen Länge dicht an der Hülle, ein Spalt ist nicht vorhanden. In der Bohrung sind der

Thermo-Elementmantel und ein Draht sichtbar. Die AmO_2 -Verteilung ist ziemlich homogen. Der größte gefundene Partikel ist auf dem Bild 5-1/4 dokumentiert, er beträgt ca. $40 \times 100 \mu\text{m}$. Interessant auf diesem Bild ist die Benetzung der Randzone des Partikels mit einer weißen Phase. Näher wurde diese Besonderheit nicht untersucht, auch hier dürfte die oben genannte Deutung (Pellet 6) zutreffen.

Prüfling T 2 - Pellet 6 - Querschliff

Diese Probe zeigt ein ähnliches Aussehen und Verhalten wie die vorangegangene Probe.

Prüfling T 4 - Pellet 5 - Längsschliff

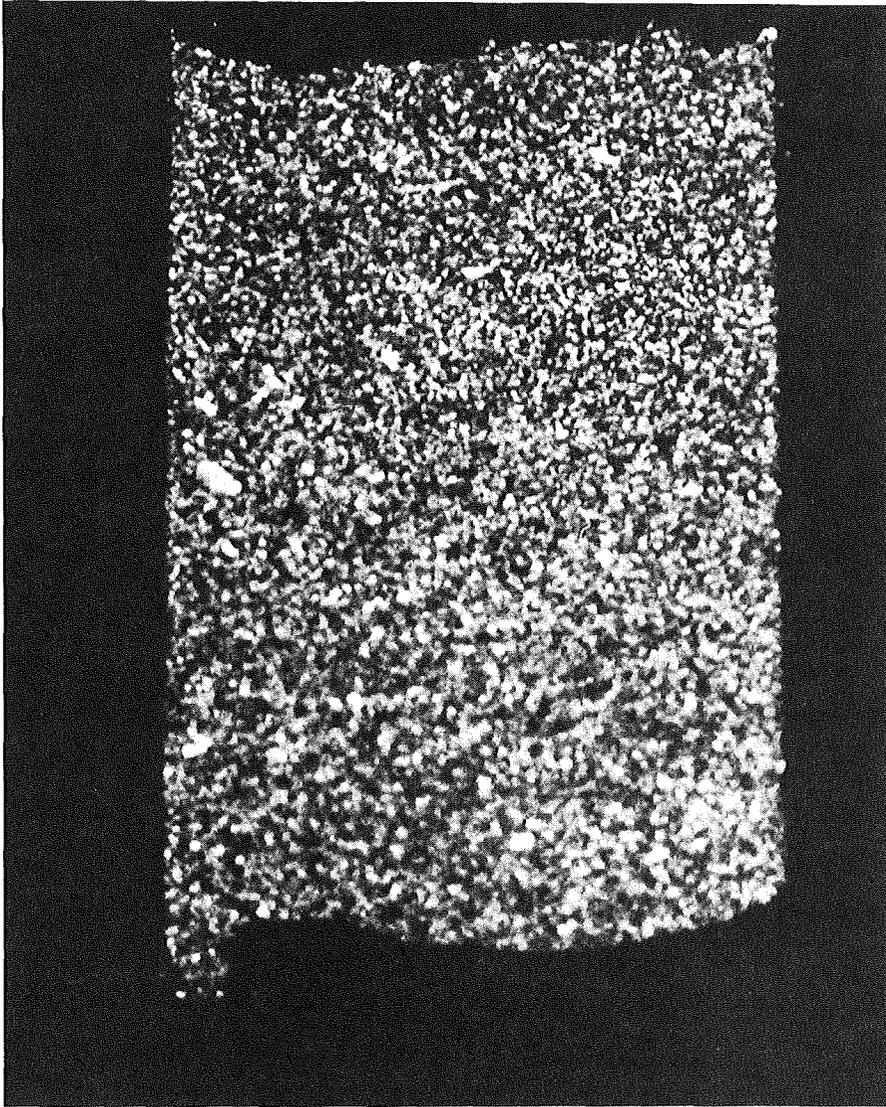
An dieser Probe wurde ein Schnitt durch die Thermoelement-Bohrung vorgenommen. Die Al-Hülle blieb unbeschädigt, es zeigte sich auch keine Reaktion zwischen Target-Material und Hüllmaterial. Der Thermoelement-Mantel ist an dieser Probe stark korrodiert und an einer Stelle durchbrochen. Das Target-Material weist keine Besonderheiten auf, die α -Autoradiografie zeigt allerdings eine schwache Aktivität am Rande der Bohrung (Bild 1/1), die auf einen Transport von α -aktiven Nukliden schließen läßt.

Prüfling T 4 - Pellet 6 - Querschliff

Die Probe zeigt keine Besonderheiten. Auf den beiden Detailaufnahmen (Bild 1/4, 1/3) sind die schon erwähnten Farbtönungen und Benetzungen der Randzonen von AmO_2 Partikeln gut sichtbar.

2.2 Zusammenfassung

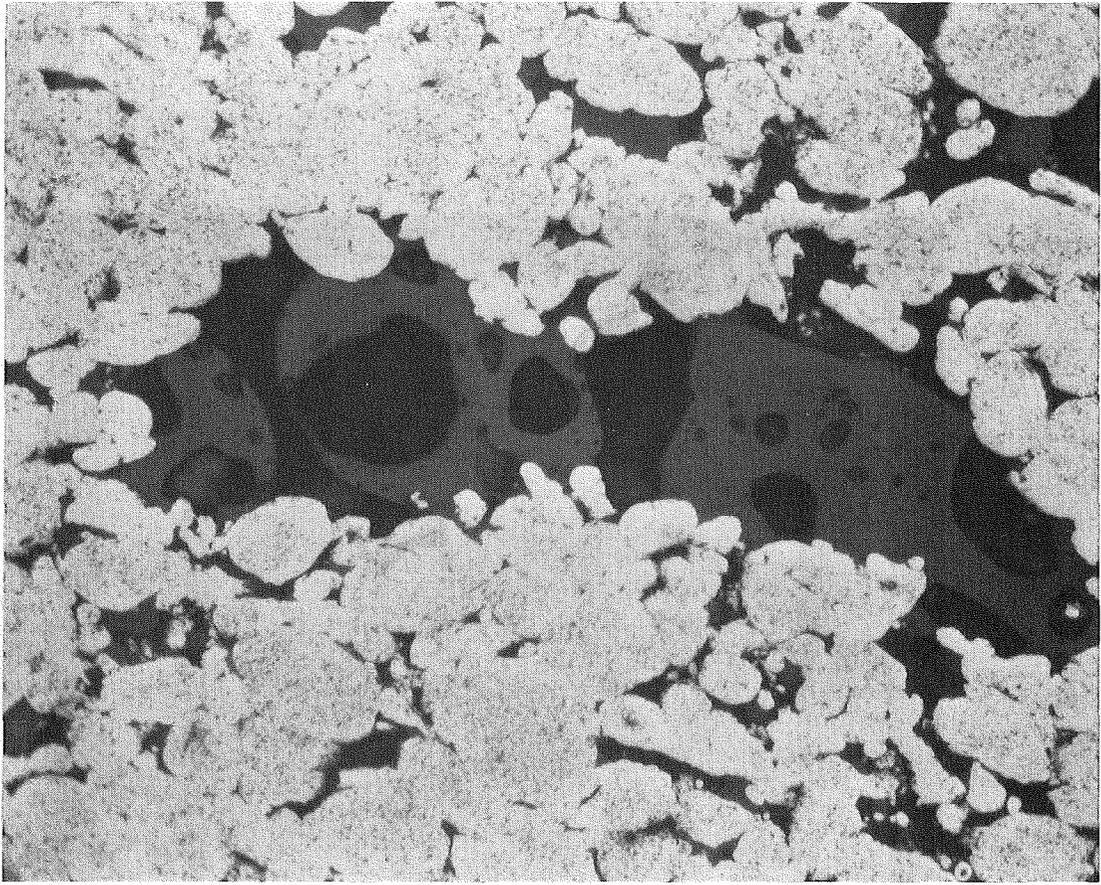
Es wurden insgesamt aus 3 Prüflingen 6 Proben metallografisch untersucht. Keine der 6 Proben zeigt eine mechanische oder chemische Beschädigung der Hülle. Das Target-Material liegt dicht an der Hülle, nur an einer Probe (T 1 - 5) wurde ein Spalt bis $300 \mu\text{m}$ festgestellt. Die AmO_2 Verteilung ist ziemlich homogen, der größte gefundene Partikel beträgt ca. $40 - 200 \mu\text{m}$ (Bild T 1 -5, - 1/4). Auffallend sind



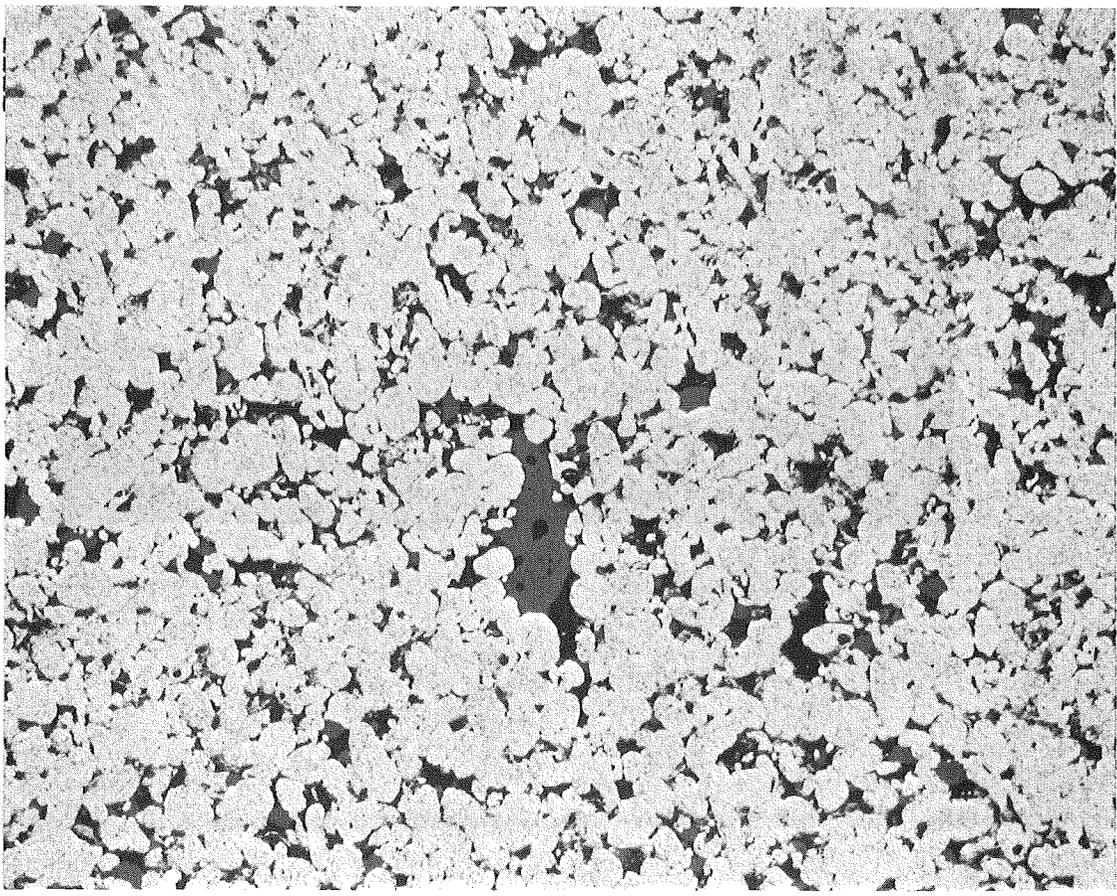
HZ-36c-HFR1-T1-Pellet 5-1/1
 α -Autoradiografie 10 x



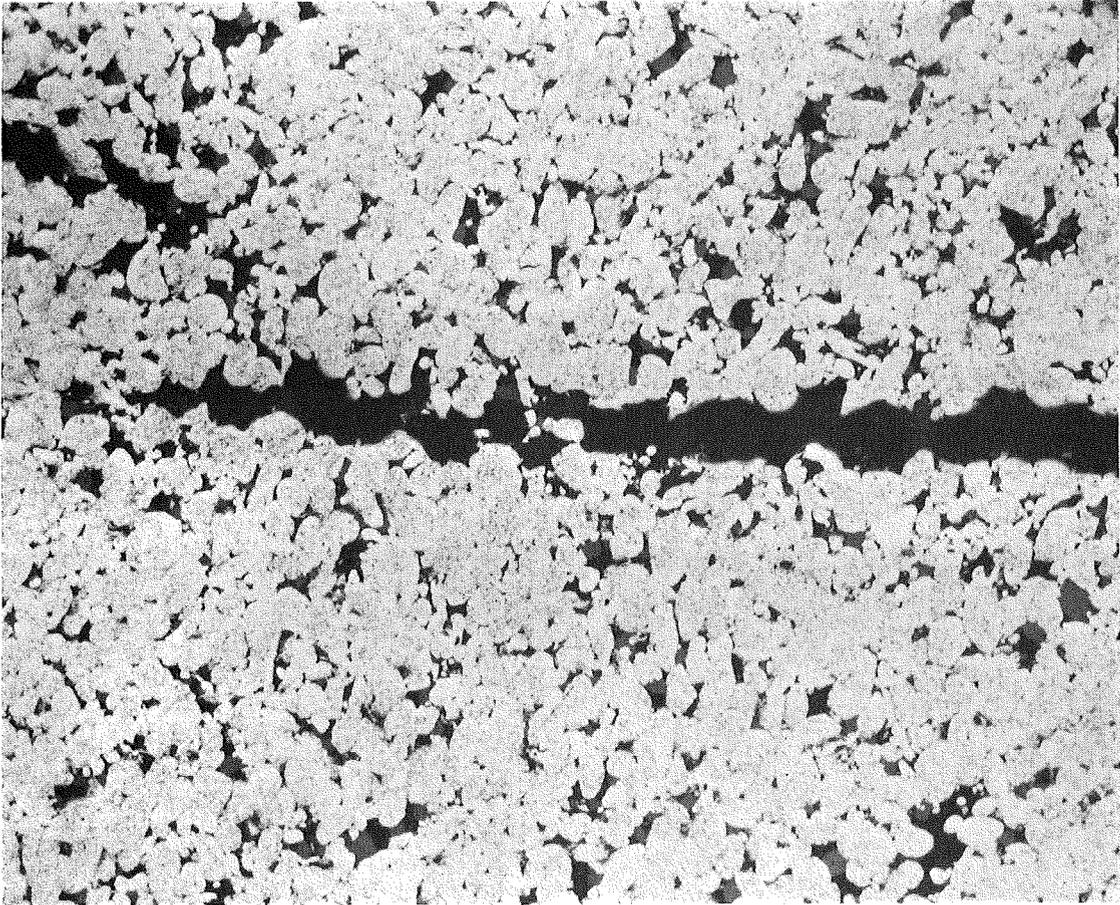
HZ-36c-HFR1-T1-Pellet 5-1/2 10 x



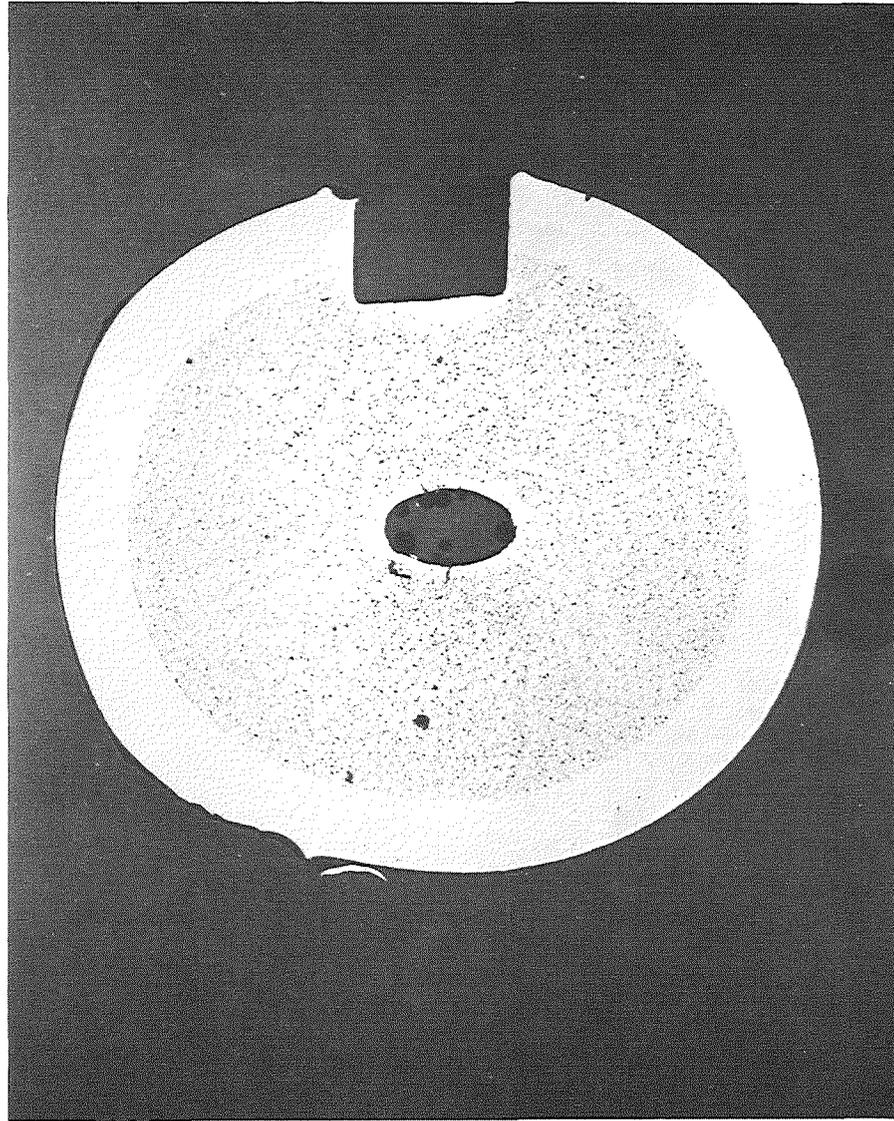
HZ-36c-HFR1-T1-Pellet 5-1/4 500 x 40 μm



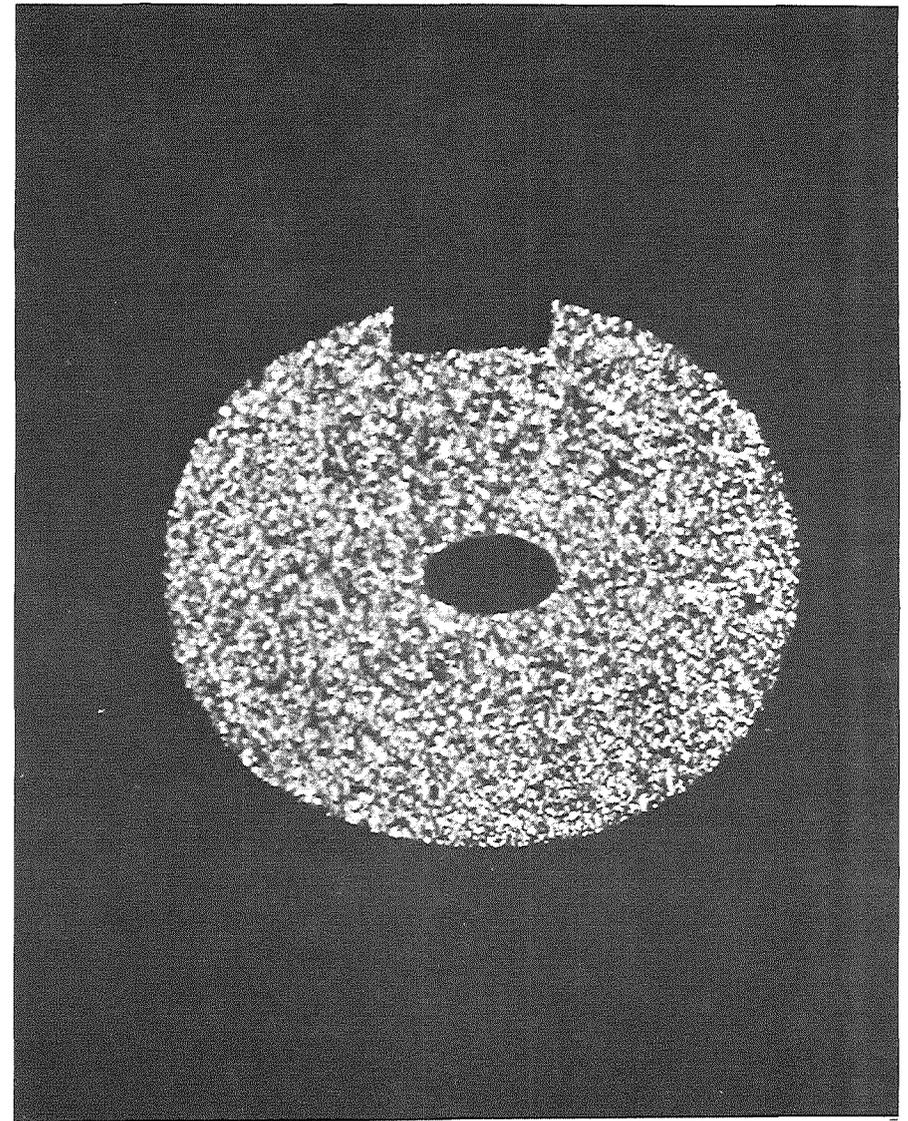
HZ-36c-HFR1-T1-Pellet 5-1/3 200 x 100 μm



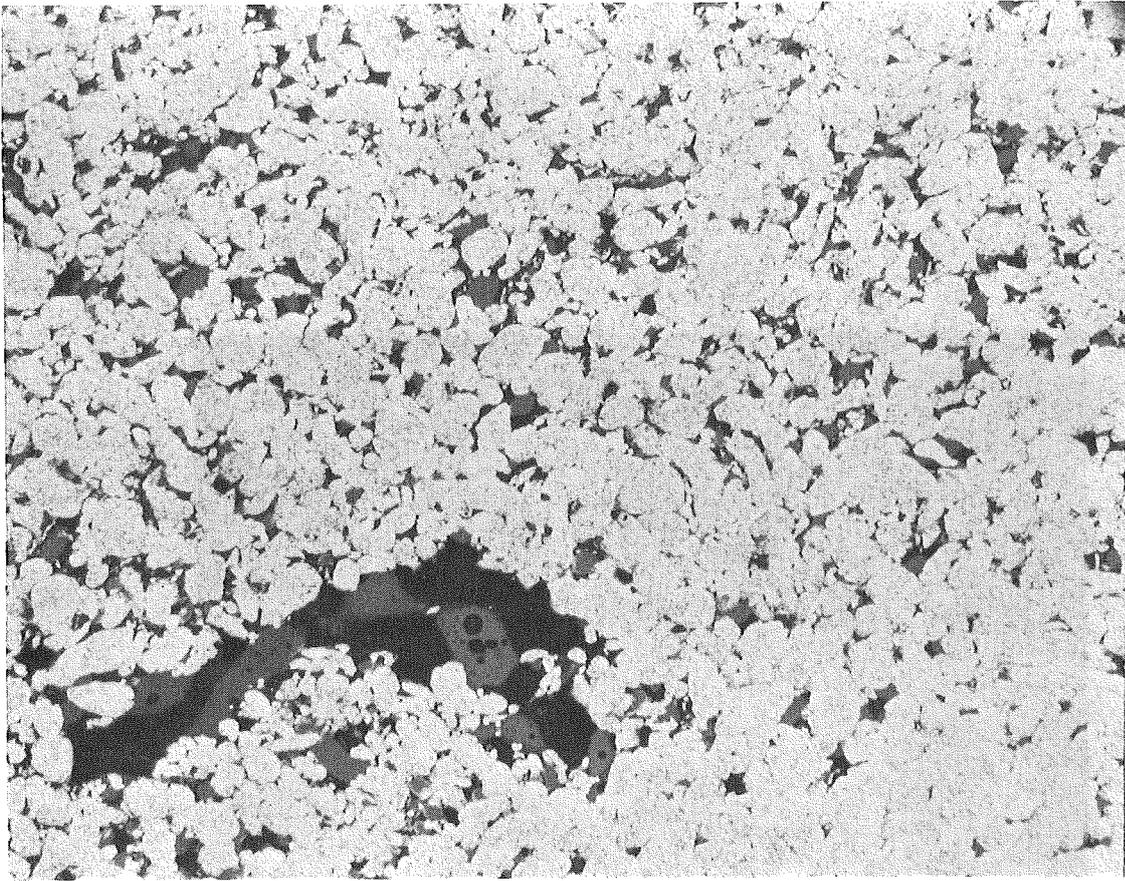
HZ-36c-HFR1-T1-Pellet 5-1/5 200 x 100 μm



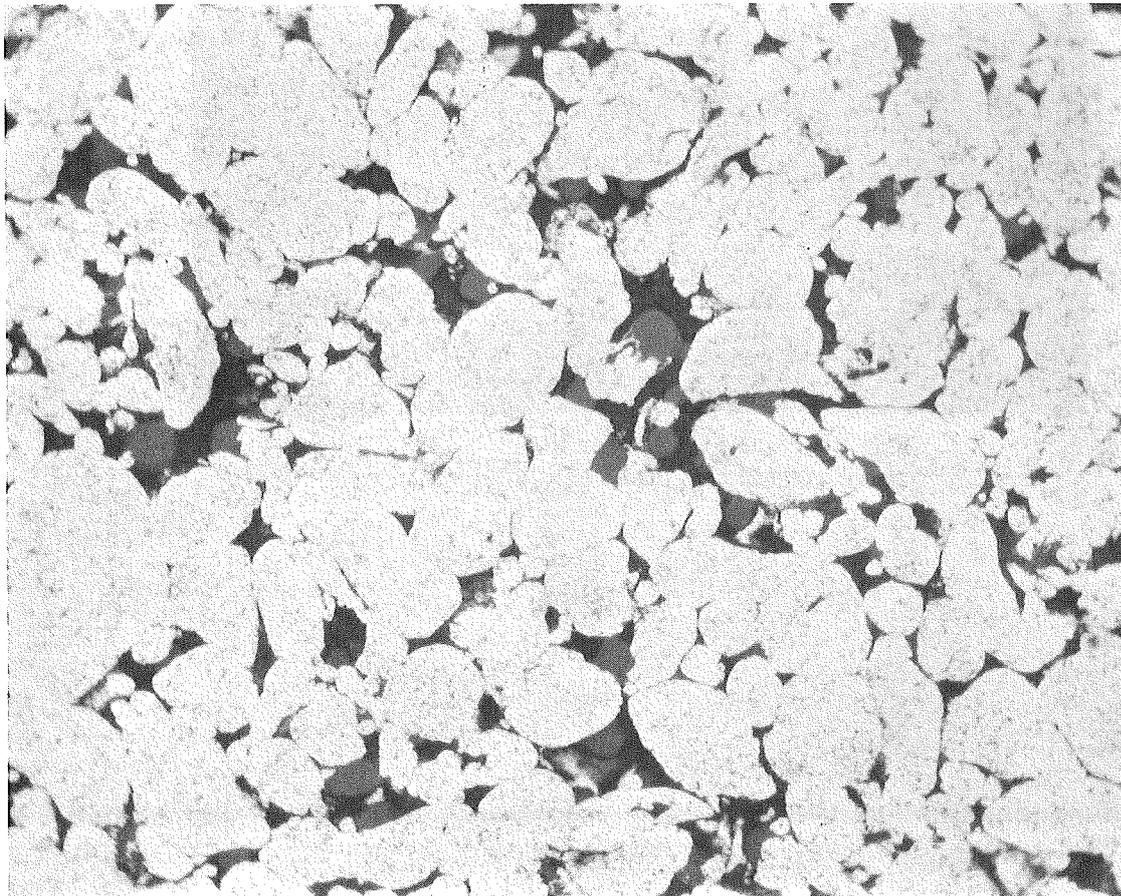
HZ-36c-HFR1-T1-Pellet 6-1/2 10 x



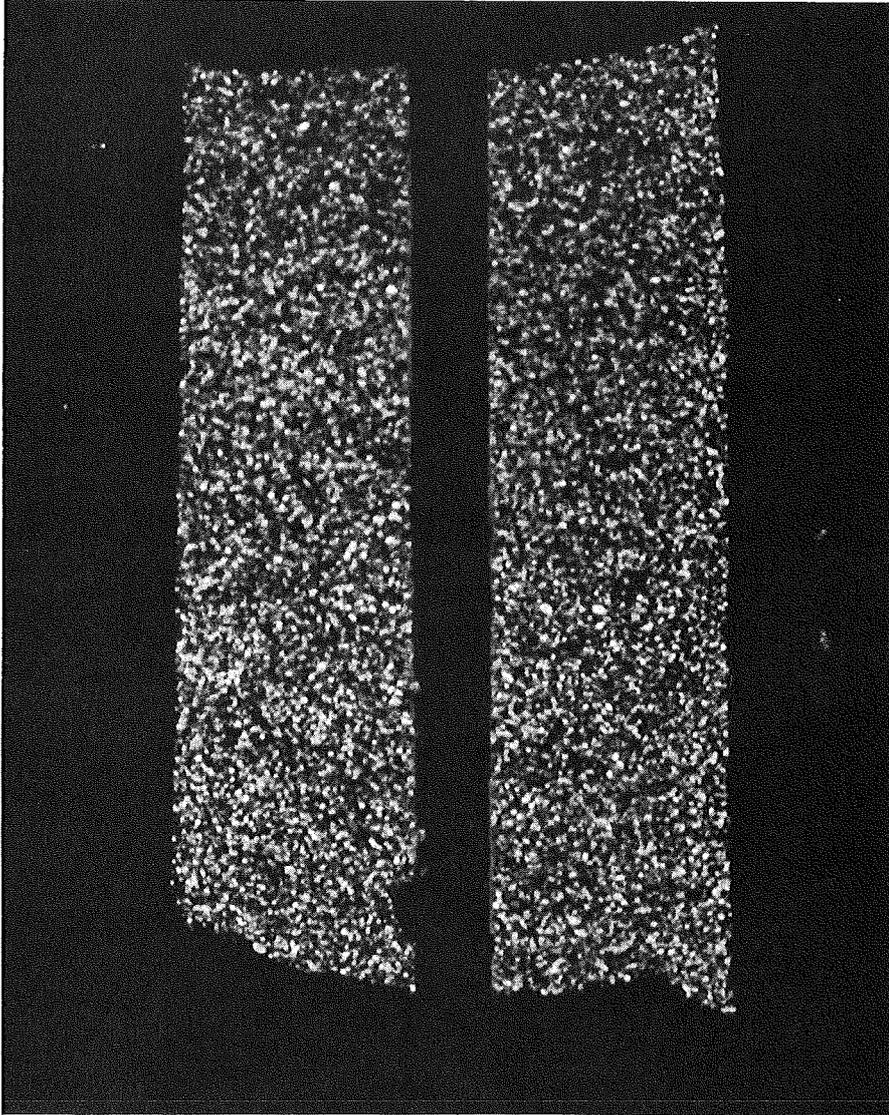
HZ-36c-HFR1-T1-Pellet 6-1/1
 α -Autoradiografie 10 x



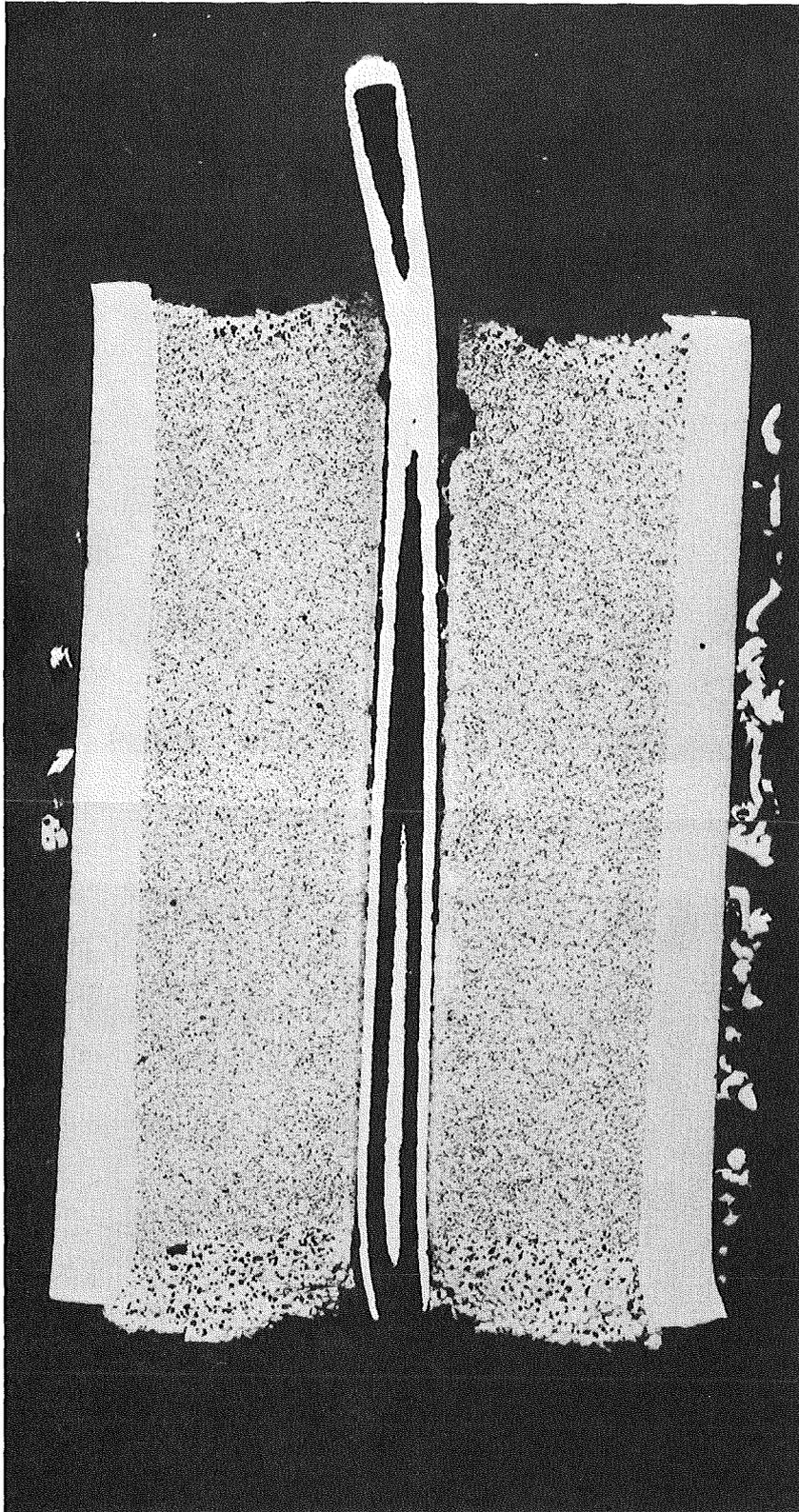
HZ-36c-HFR1-T1-Pellet 6-1/3 200 x 100 μm



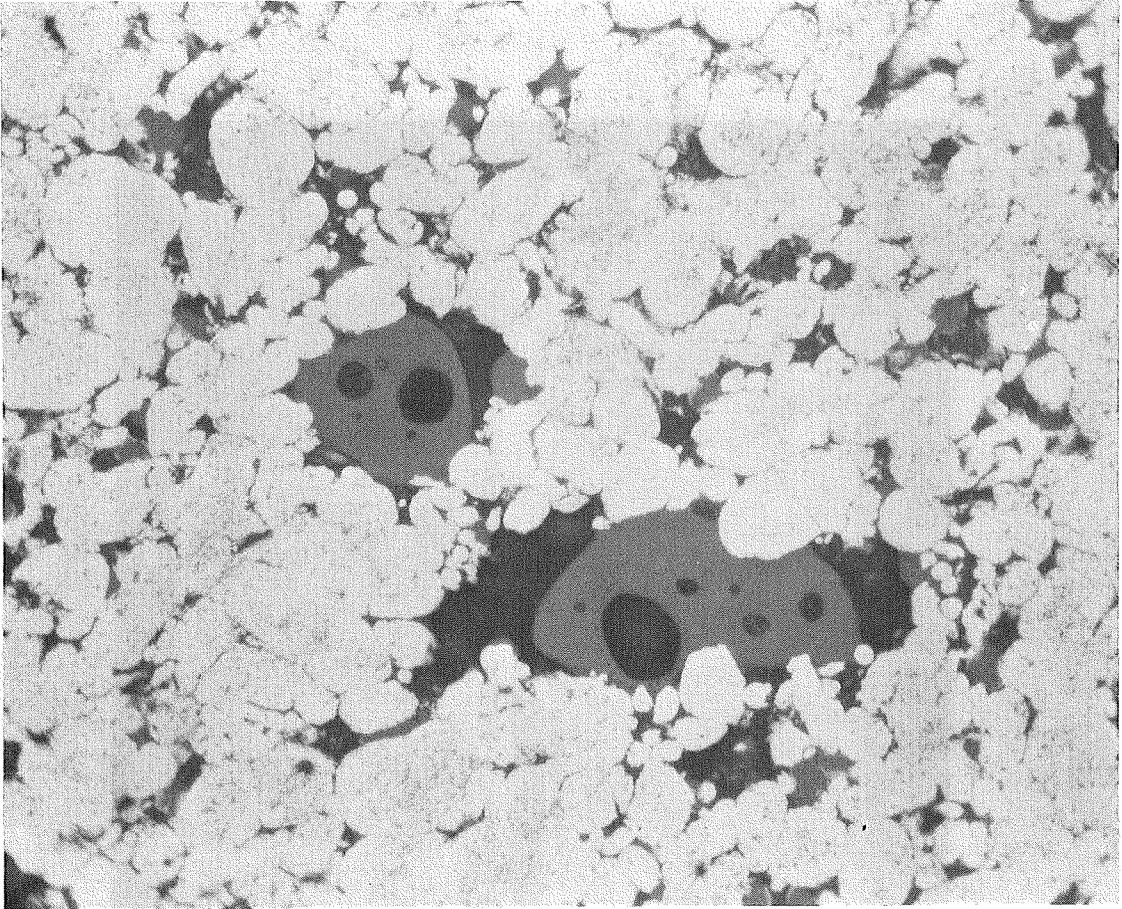
HZ-36c-HFR1-T1-Pellet 6-1/4 500 x 40 μm



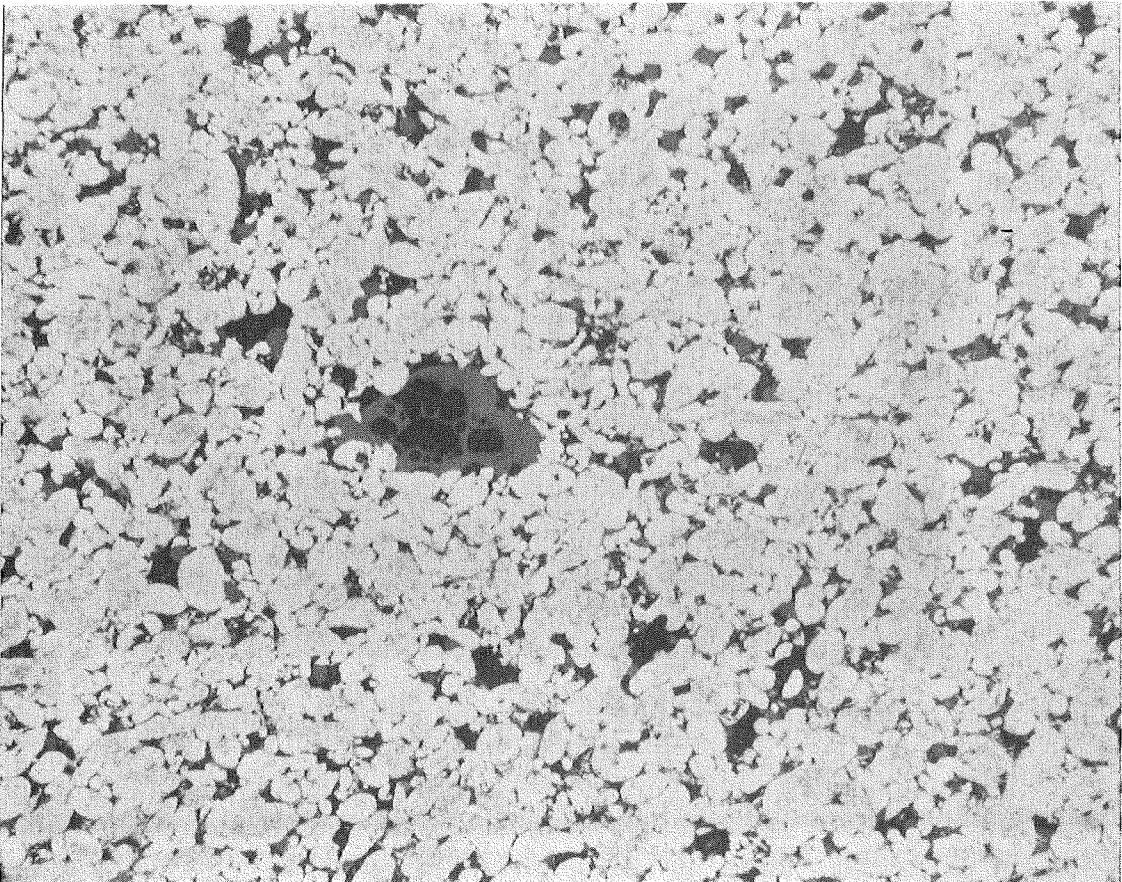
HZ-36c-HFR1-T2-Pellet 5-1/1
 α -Autoradiografie 10 x



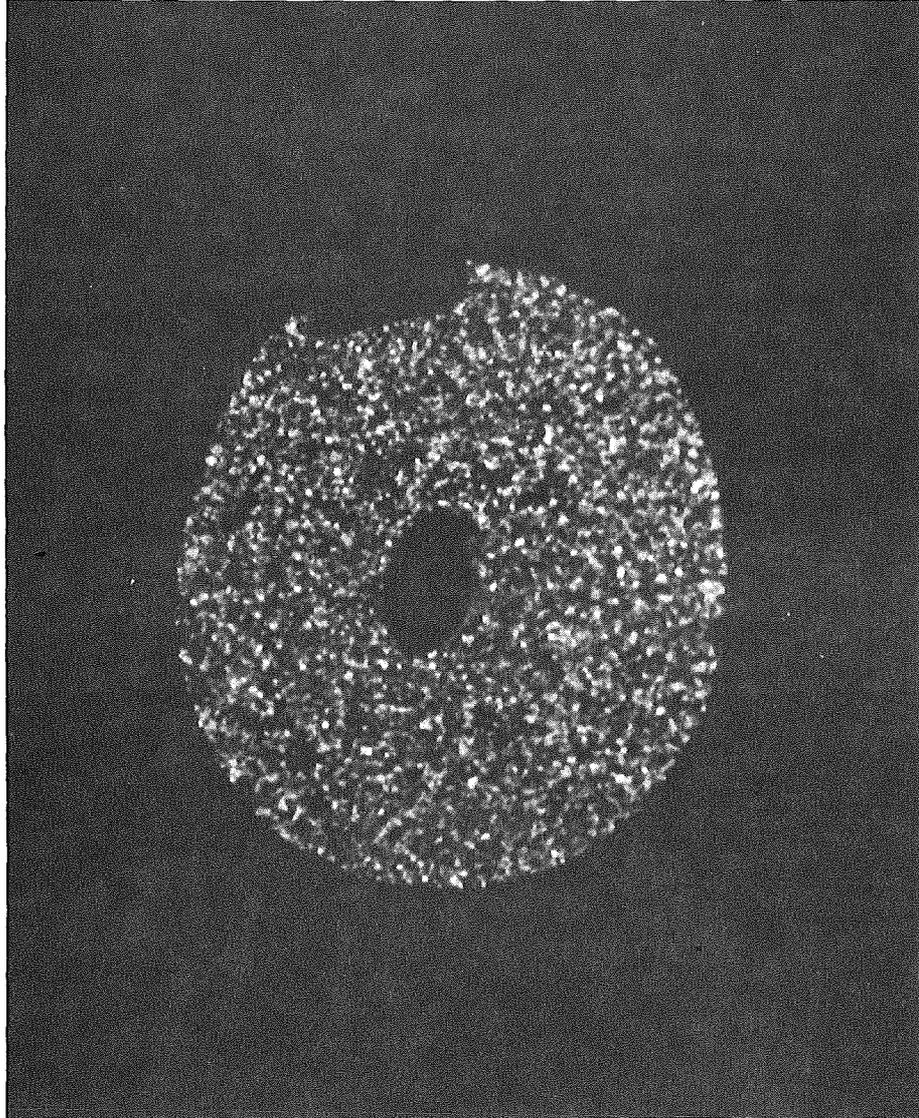
HZ-36c-HFR1-T2-Pellet 5-1/2 10 x



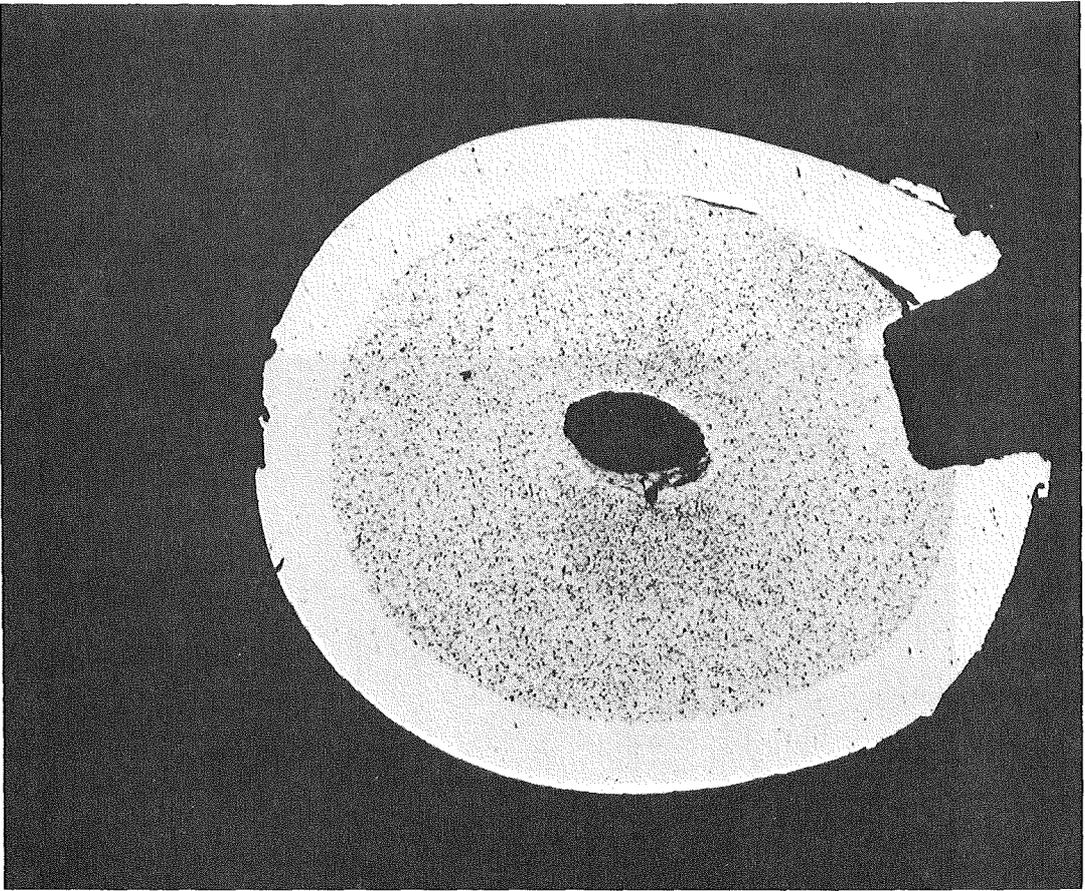
HZ-36c-HFR1-T2-Pellet 5-1/4 500 x 40 μm



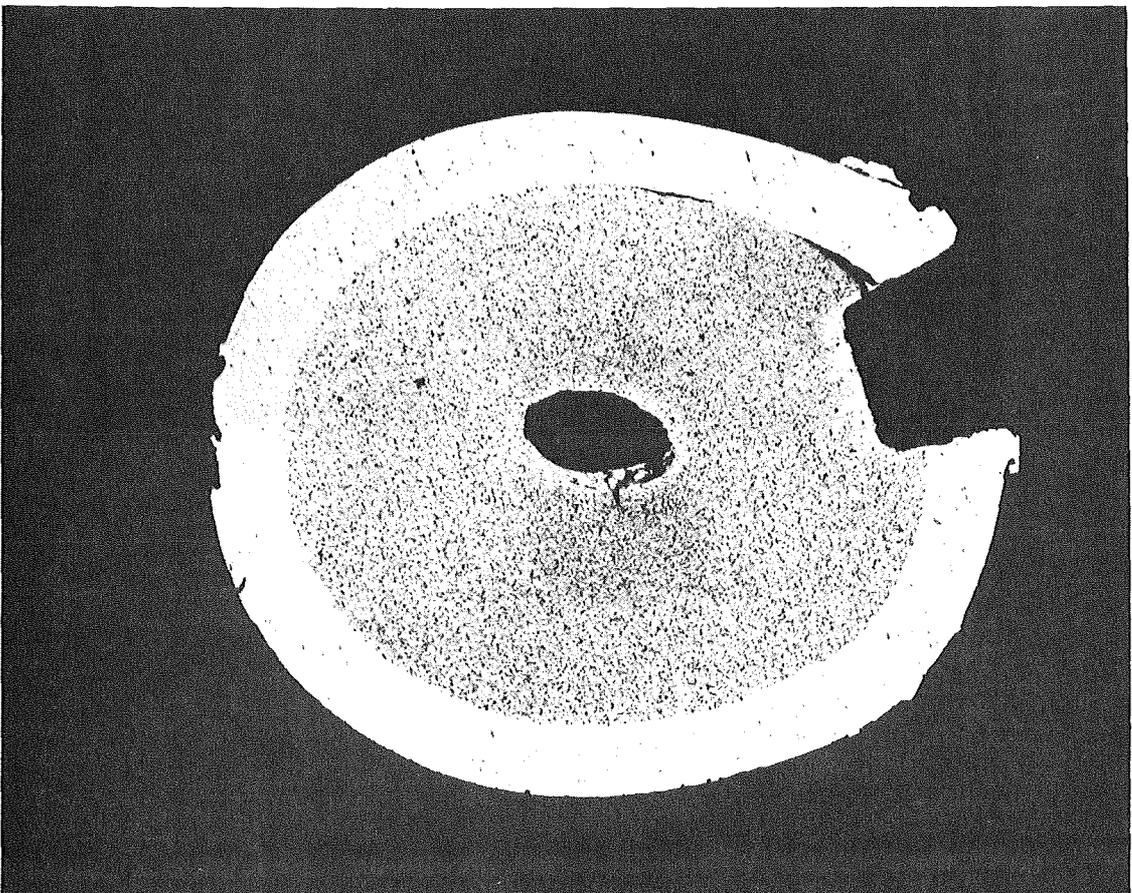
HZ-36c-HFR1-T2-Pellet 5-1/3 200 x 100 μm



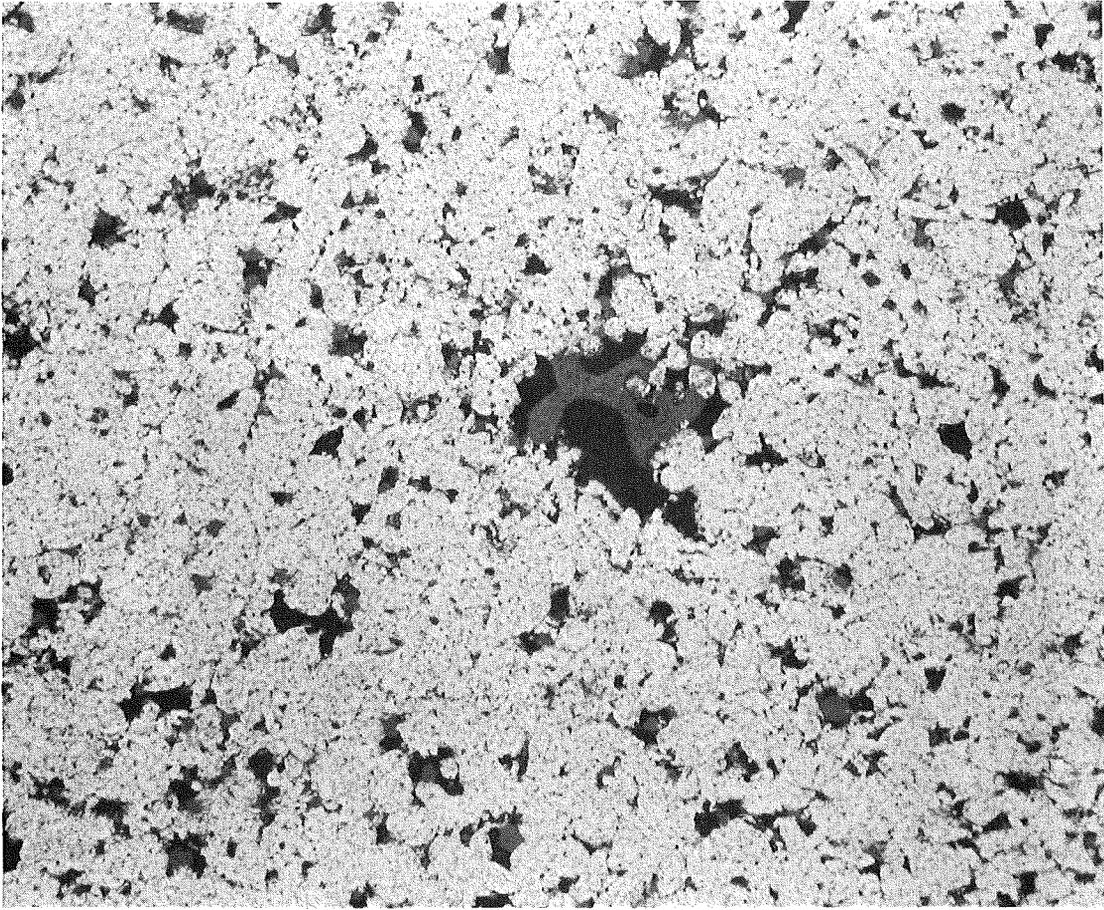
HZ-36c-HFR1-T2-Pellet 6-1/1
 α -Autoradiografie 10 x



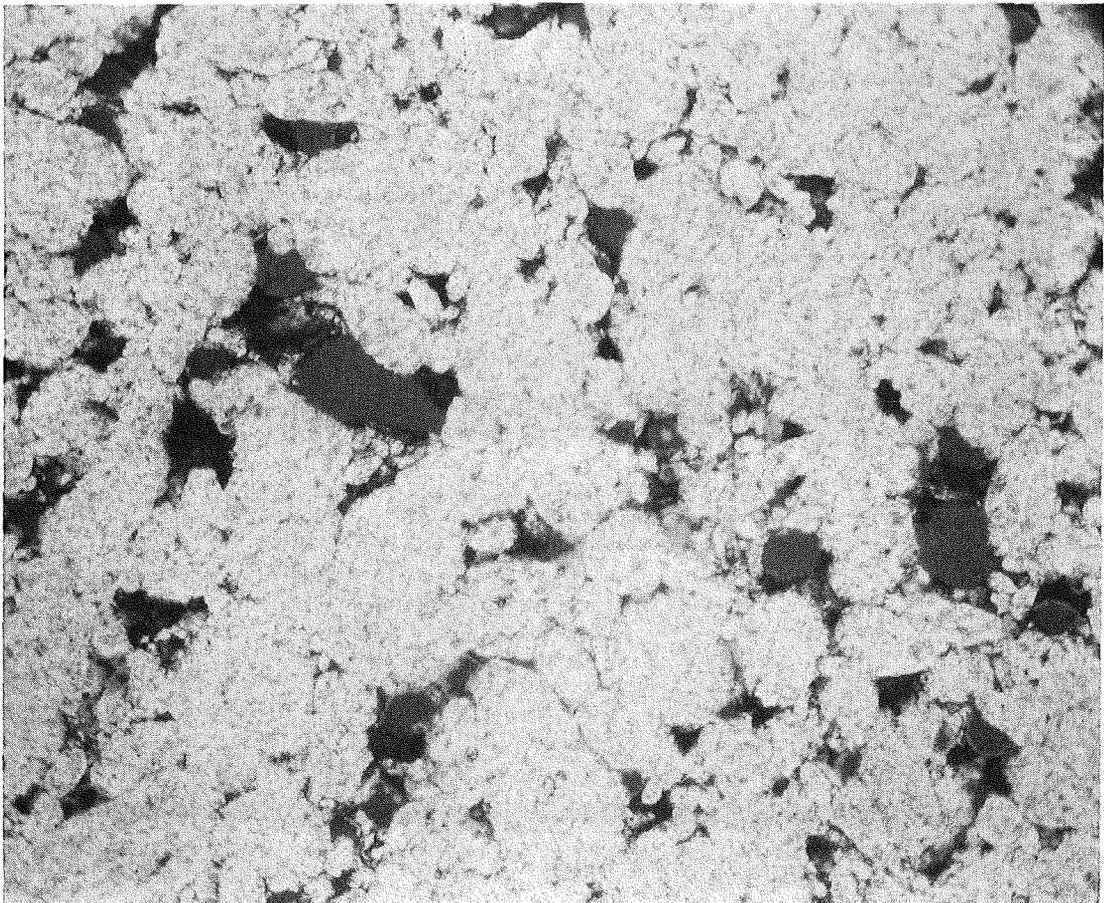
HZ-36c-HFR1-T2-Pellet 6-1/3 10 x
geätzt



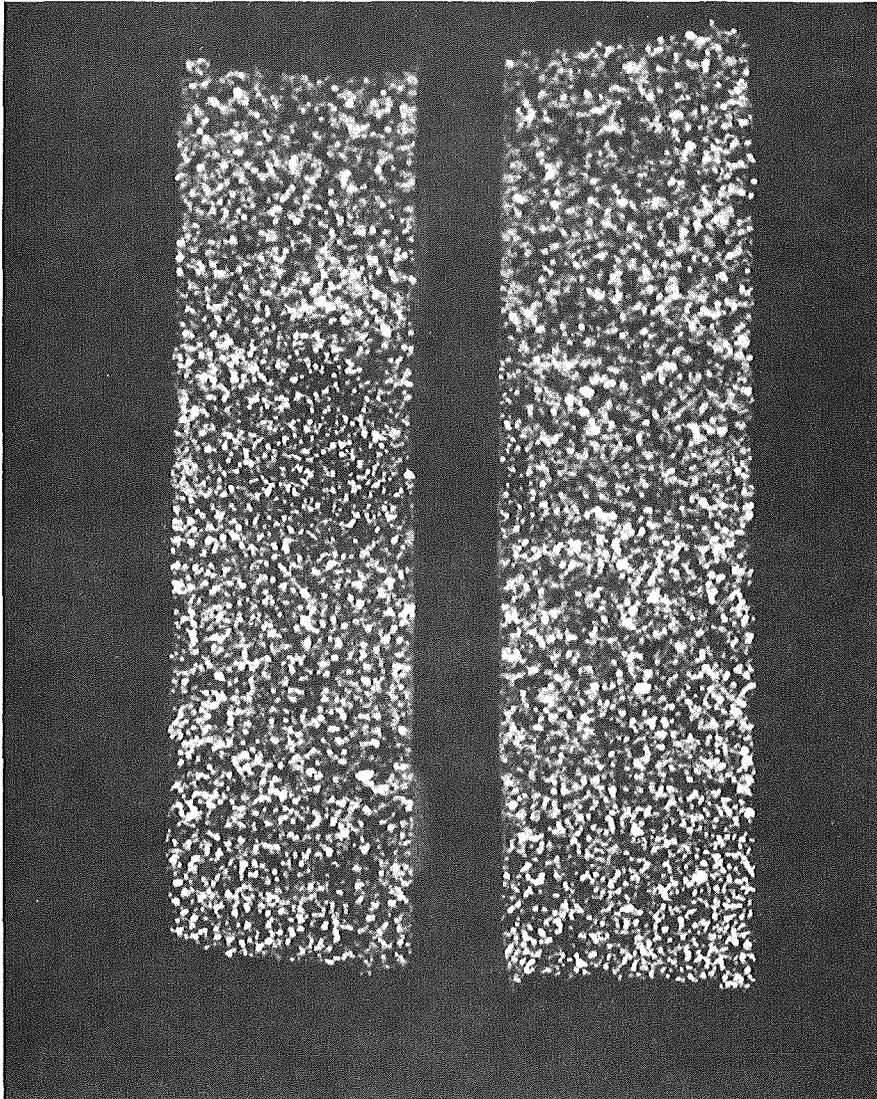
HZ-36c-HFR1-T2-Pellet 6-1/2 10 x



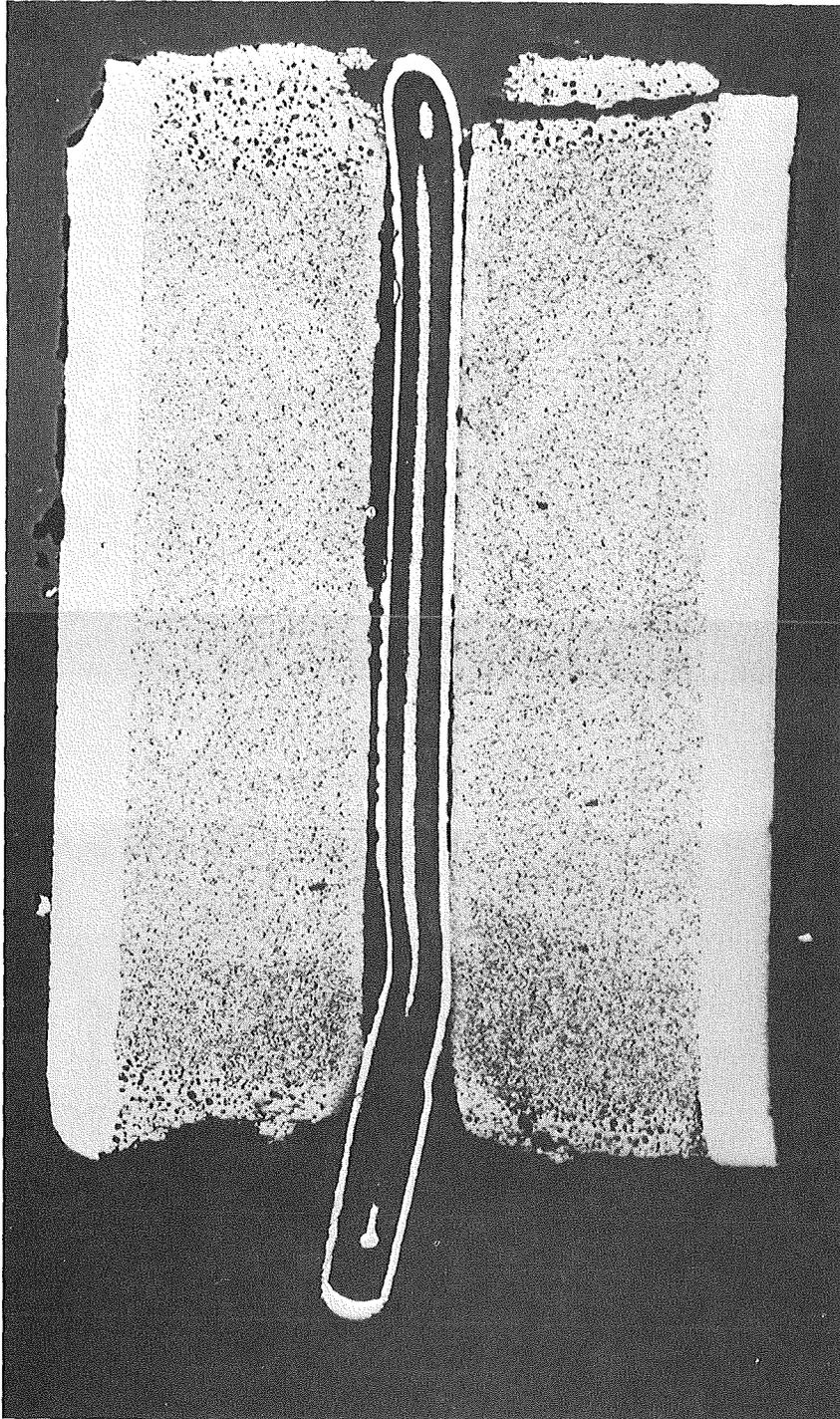
HZ-36c-HFR1-T2-Pellet 6-1/4 200 x 100 µm
Geätzt



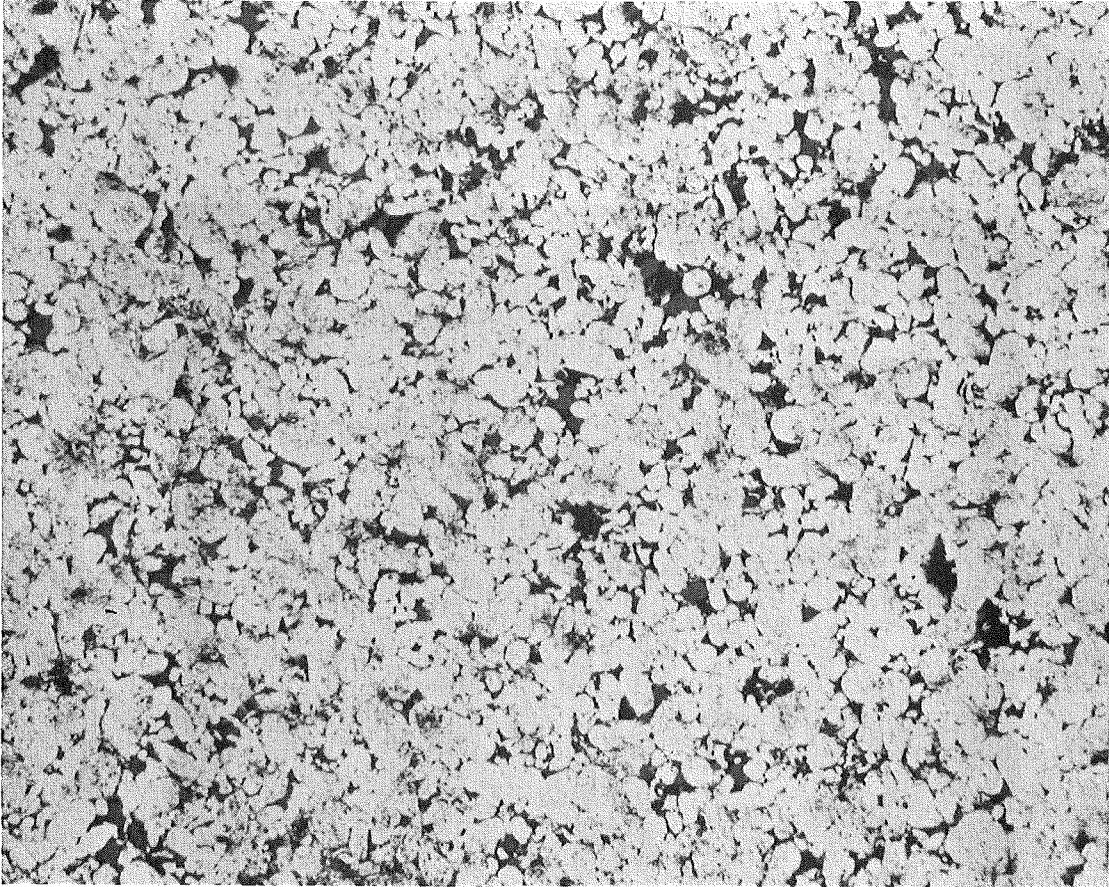
HZ-36c-HFR1-T2-Pellet 6-1/5 500 x 40 µm
Geätzt



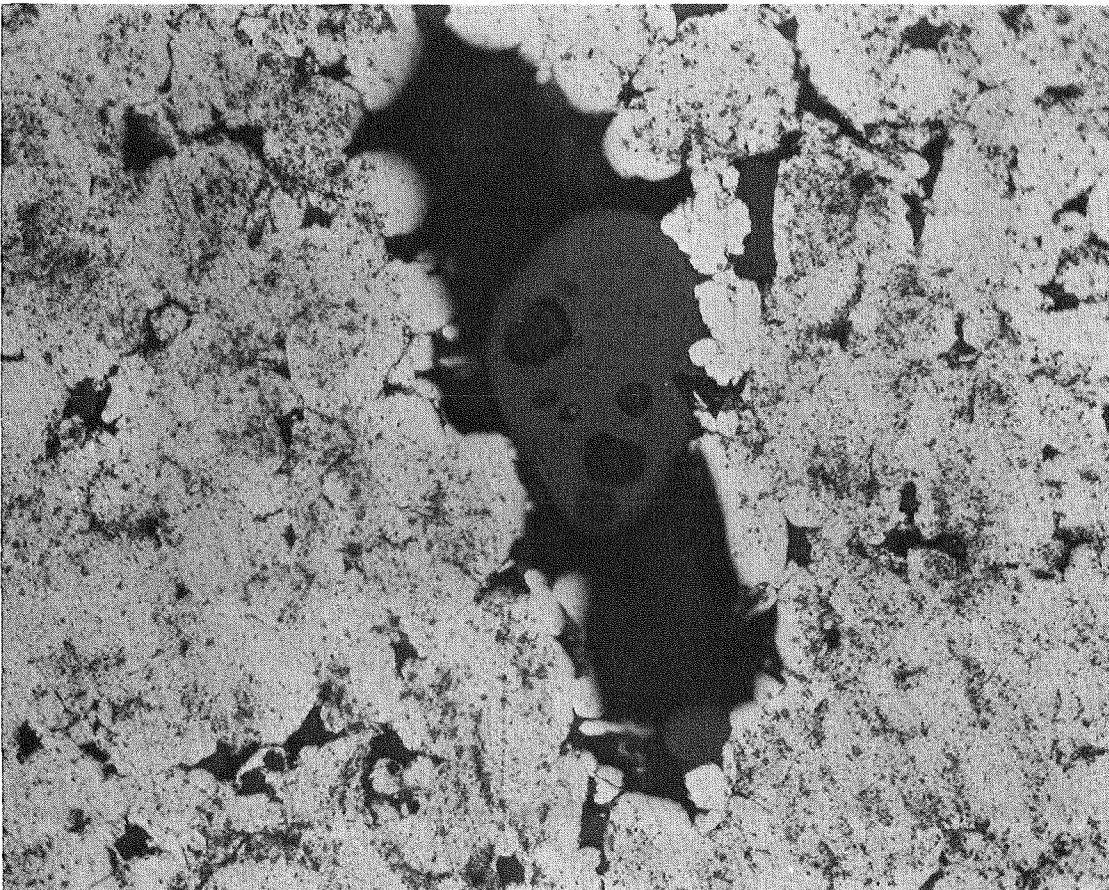
HZ-36c-HFR1-T4-Pellet 5-1/1
 α -Autoradiografie 10 x



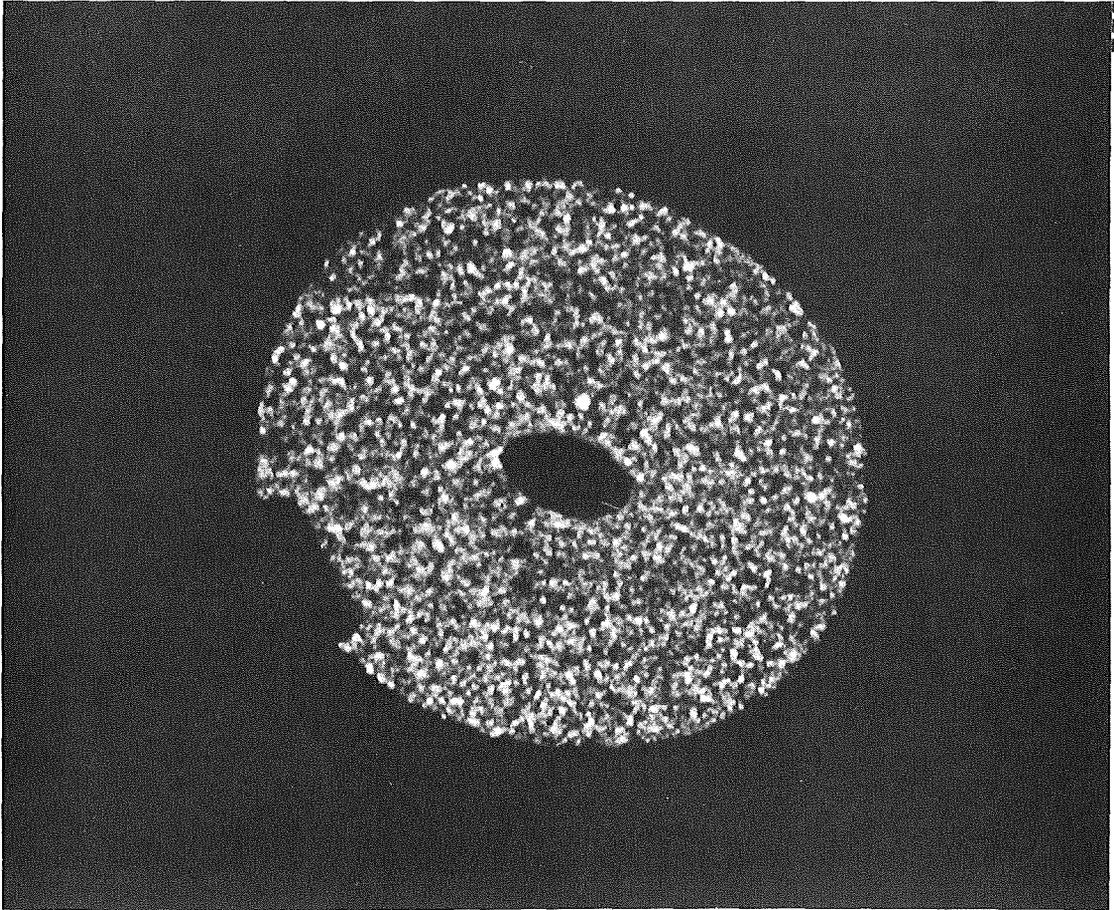
HZ-36c-HFR1-T4-Pellet 5-1/2 10 x



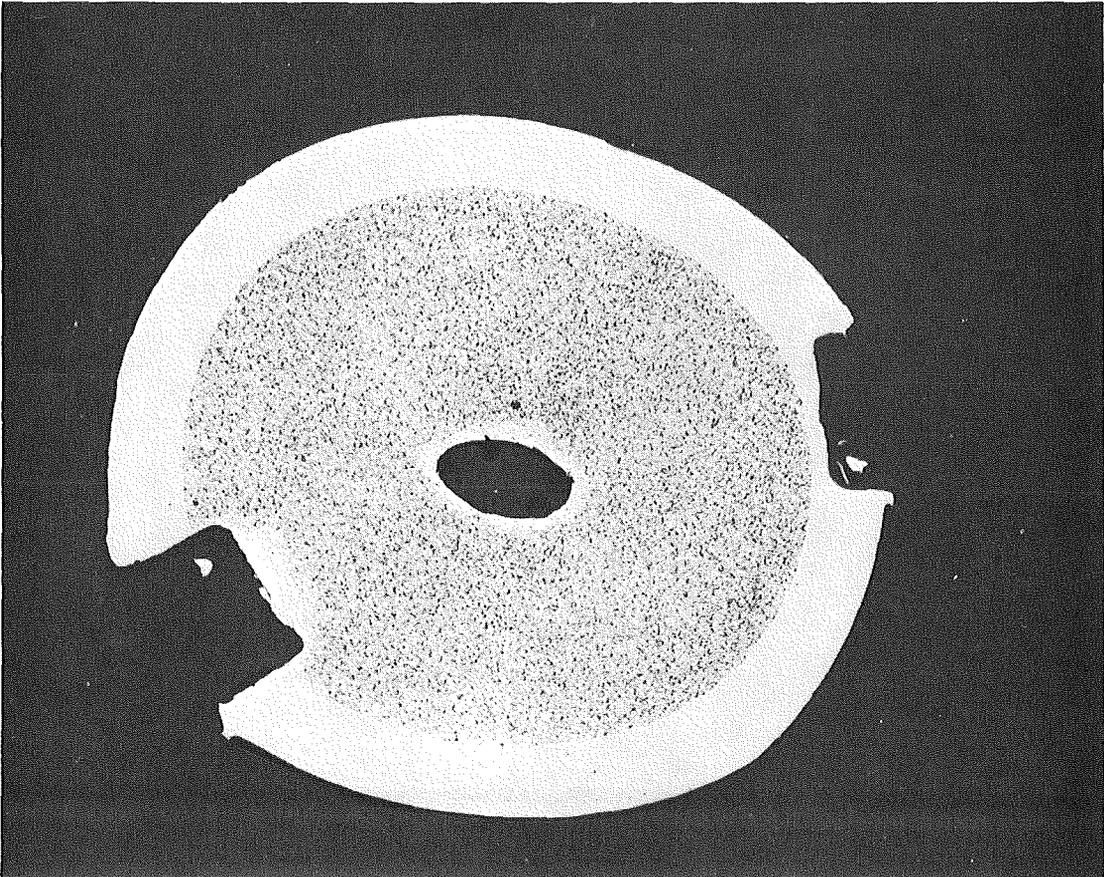
HZ-36c-HFR1-T4-Pellet 5-1/3 200 x 100 μm



HZ-36c-HFR1-T4-Pellet 5-1/4 500 x 40 μm



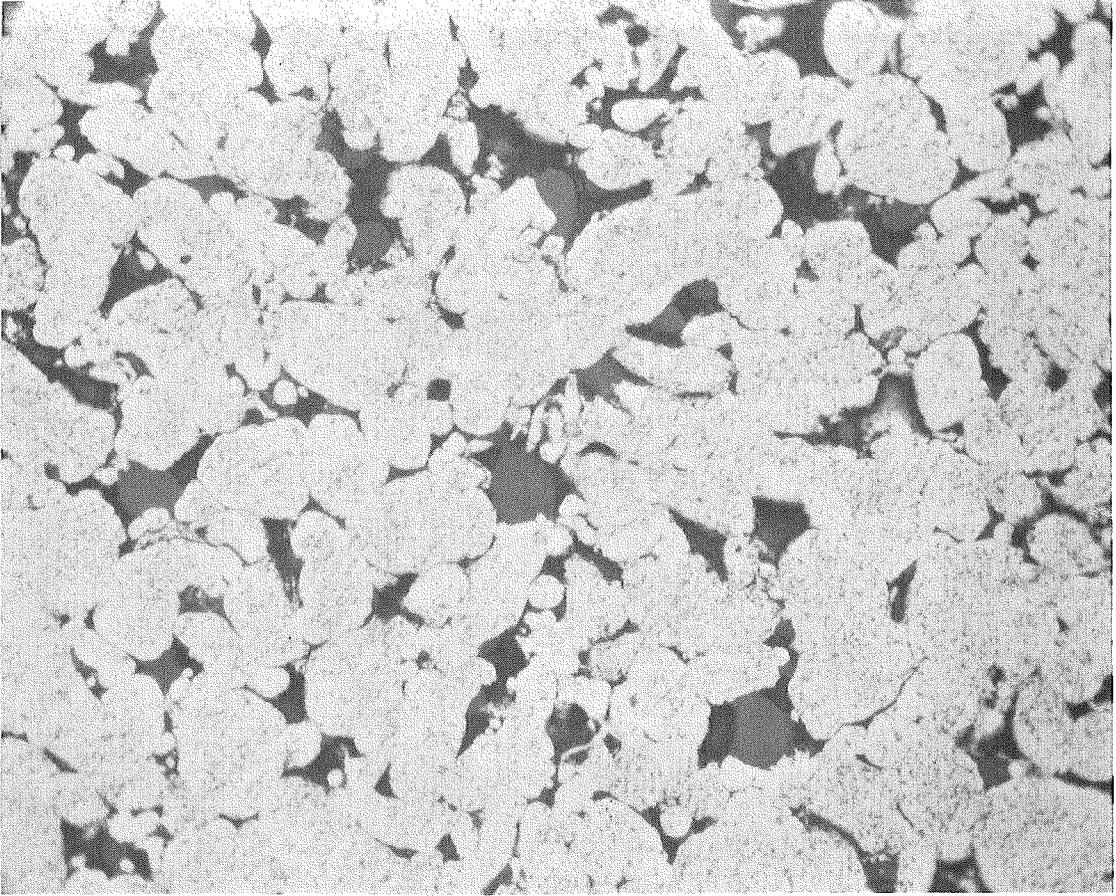
HZ-36c-HFR1-T4-Pellet 6-1/1
 α -Autoradiografie 10 x



HZ-36c-HFR1-T4-Pellet 6-1/2 10 x

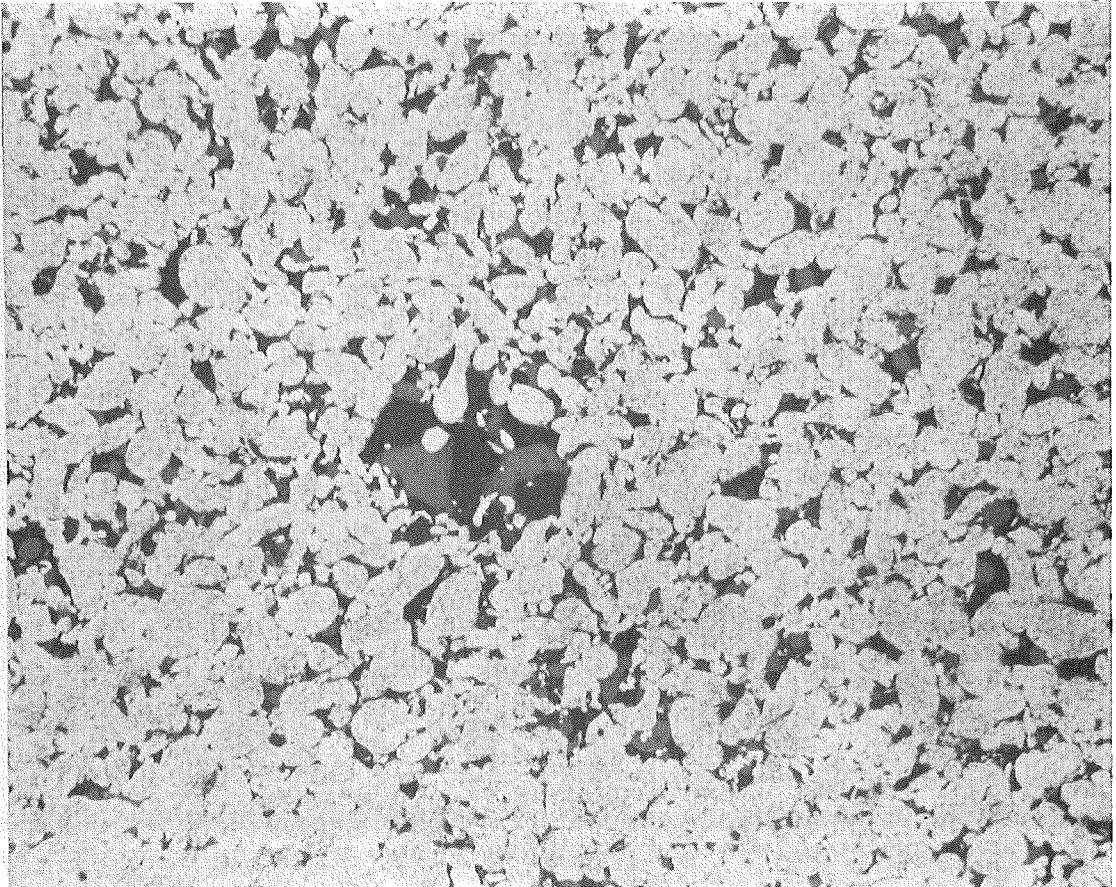
HZ-36c-HFR1-T4-Pellet 6-1/4 500 x

40 μm



HZ-36c-HFR1-T4-Pellet 6-1/2 200 x

100 μm



die scharfen Autoradiografie-Aufnahmen (viele diskrete helle Punkte). An einzelnen Partikeln wurde die Bildung neuer Phasen und Poren festgestellt, das zeigen auch die Detailaufnahmen (T 4-6-1/4 und T 2-5-1/4). An zwei Proben (T 2-5 und T 4-5) konnten noch die Thermo-element-Reste festgestellt werden. In beiden Fällen war der Thermo-element-Mantel korrodiert, an der Probe T 4-5 besonders stark (an einer Stelle wurde der Mantel durchbrochen).

2. Bestrahlungseinsatz HFR 2

2.1 Demontage und visuelle Kontrolle

Die Demontage der Stäbe aus dem Einsatz bereitete im Gegensatz zu HFR 1 keine Schwierigkeiten.

Die Prüflinge sind unbeschädigt. Die Mantelflächen der drei unteren Prüflinge weisen einen rotbraunen Belag auf, durchsetzt von hellen Flecken. Bei den restlichen 6 Stäben dominiert der metallisch glänzende Teil der Mantelflächen, teilweise unterbrochen von matten, zum Teil dunklen Flecken (Abb. 3112.9).

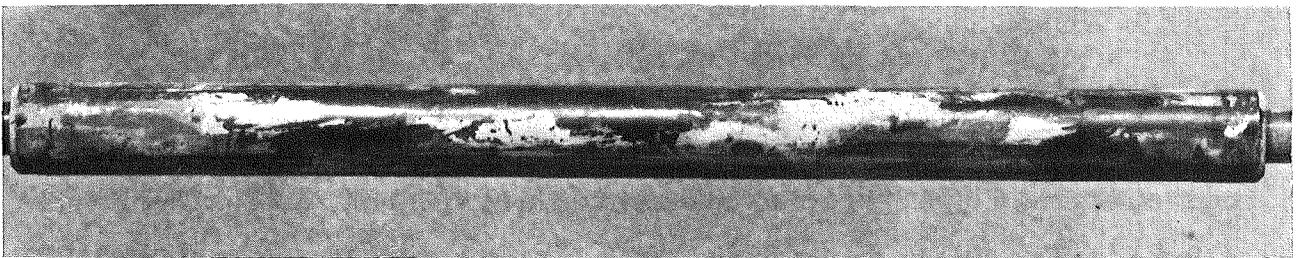


Abb. 3112.9: Prüfling 1 C aus oberem Stabbündel.

2.2 Dimensionskontrolle der Prüflinge

Die mittleren Durchmesser der drei unteren Prüflinge lagen zwischen 11,99 und 12,01 mm, die maximalen Ovalitäten in Prüflingsmitte betrugen 25 bis 200 μm , die Prüflingslängen 158,46 bis 158,61 mm. Die unbestrahlten Prüflinge wurden nicht nach gleicher Methode vermessen,

eine Gegenüberstellung der Werte ist daher nicht möglich.

2.3 Oberflächentemperatur

Die gemessenen Temperaturen erreichten 60 min nach Entnahme aus dem Kühlmittel Werte von 190 bis 206°C in Prüflingsmitte der drei unteren Stäbe, der Temperaturabfall zu den Prüflingsenden war 20 bis 45°C. Die entsprechenden Werte von vier weiteren Prüflingen sind 105 bis 140°C und 5 bis 30°C.

2.4 γ -Spektrometrie

Beim scan je eines Stabes aus jedem Bündel ergaben sich außer einer Erhöhung der Impulsraten um den Faktor 4 keine Änderungen gegenüber den Ergebnissen bei HFR 1. In den Energiespektren treten zusätzlich Cm 243-peaks auf.

Am Stab 6C wurde ein zweimaliger integraler Lecktest unter äußerem Helium-Druck mit anschließendem Eintauchen in Alkohol durchgeführt, die Ergebnisse waren negativ.

2.5 Freie Spaltgase und freies Volumen

In fünf auf freie Spaltgase untersuchten Prüflingen wurden He-Mengen von 3,8 bis 15,6 Ncm³, Kr-Mengen von < 10 bis 25 Nmm³ und Xe-Mengen von < 30 bis 52 Nmm³ abgesaugt; die maximalen Gasmengen lieferten die drei Prüflinge des unteren Bündels. Die experimentell ermittelten freien Volumina lagen zwischen 0,93 und 1,22 Ncm³.

Aus den Prüflingen 5C und 7C wurden die AmAl-Zylinder und Flußdetektoren vorab entnommen. 9 der Pellets wurden zu IHCh transportiert, 3 Pellets aus 5C aufgelöst und zur chemischen Analyse in IRCh ausgeschleust.

3112.1.b **LEGIERUNGSTECHNIK**

1. Bestrahlungsverhalten von ^{241}Am -Al-Legierungen

W. Jung, W. Robel, L. Schmidt

Die im Dezember 1972 begonnene Bestrahlung 10%iger Am-Al-Legierung in einer Brennelement- und in einer Reflektorposition des BR2/Mol verlief störungsfrei. Nach den Angaben aus Mol wurden folgende Neutronendosen erreicht:

Brennelementposition	:	7,34 . 10 ²⁰ n/cm ²	(therm.)
		7,72 . 10 ²⁰ n/cm ²	(schnell)
Reflektorposition	:	5,42 . 10 ²⁰ n/cm ²	(therm.)
		2,29 . 10 ²⁰ n/cm ²	(schnell).

Die Nachbestrahlungsuntersuchungen sollen im 1. Halbjahr 1974 abgeschlossen werden.

2. Herstellung von ^{237}Np -Al-Folien für Spaltfragmentdosimeter

W. Jung, W. Robel

Ein Verfahren zur Herstellung von Neptunium -237-Aluminiumfolien wurde ausgearbeitet und eine Reihe von Folien an die GSF ausgeliefert (eine Anforderung der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt liegt vor, sie wird Anfang 1974 abgewickelt werden). Diese Folien sollen für die Routine bzw. Unfalldosimetrie in Neutronen-Spaltfragmentdosimetern eingesetzt werden (von allen spaltbaren Materialien ist Np-237 auf Grund seiner niedrigen Schwellenenergie-0,75 MeV- am besten zum Nachweis schneller Neutronen in einem möglichst breiten Energiebereich geeignet; das Spaltfragmentdosimeter bietet den Vorteil völliger γ -Unempfindlichkeit).

Daten der hergestellten bzw. ausgelieferten Folien:

Np-Gehalt 0,1-10 Gew% Np

Dicke 15-200 μ

Pu-Gehalt (als Verunreinigung des Pu): $\leq 2 \cdot 10^{-7}$ g Pu/Np

α -Autoradiographische Untersuchungen (s. Abb. 3112.10) zeigten, daß durch das Herstellungsverfahren eine sehr gute Homogenität der Np-Verteilung in der Aluminiummatrix erreicht wird; wischbare Np-Aktivität konnte nicht festgestellt werden. Die Untersuchungen der GSF- α -Autoradiographie, Schwärzungskurven, Abhängigkeit der Spurendichte von der Neutronendosis, Empfindlichkeit etc. (siehe Punkte 3 u. 4) erbrachten ebenfalls positive Ergebnisse. Nach Aussage der GSF ist geplant, die Folien im Jahre 1974 probeweise in der Routine-dosimetrie einzusetzen.

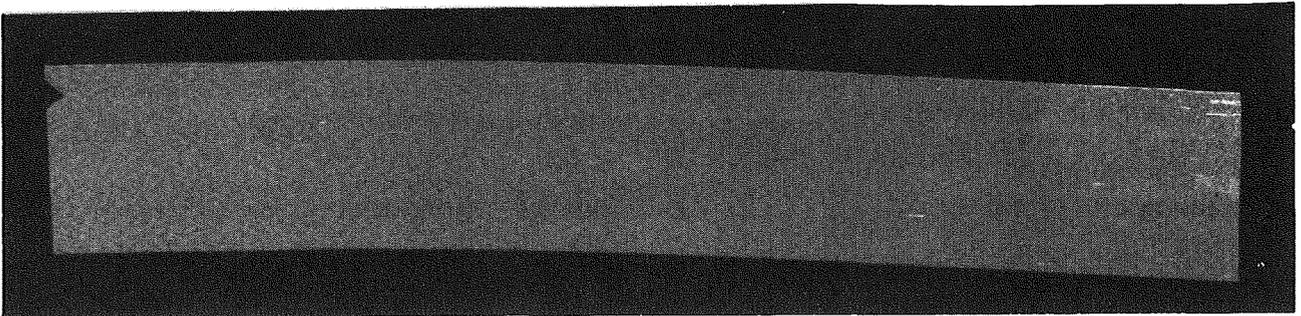


Abb. 3112.10: α -Autoradiographie an einer ^{237}Np -Al-Legierungsfolie für Spaltfragmentdosimeter

3. Homogenitätsprüfungen an ^{237}Np -Al-Folien W. Scholtyssek

Aus der gelieferten Folie wurde eine kreisförmige Quelle (Durchmesser 25,4 mm) geschnitten und auf einen Al-Träger aufgeklebt.

Die Quelle wurde bezüglich absoluter Aktivität, α -Spektrum und Homogenität untersucht.

Die Messung wurde in einer Kleinwinkelmeßanlage durchgeführt (Abb. 3112.11)

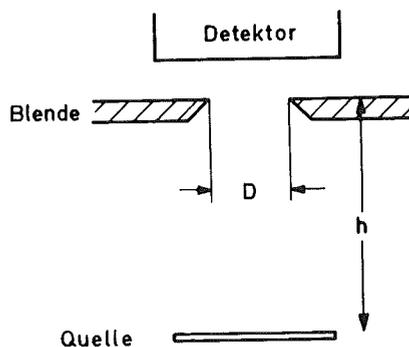


Abb. 3112.11: Geometrie der Kleinwinkelmeßanlage zur α -Spektrometrie

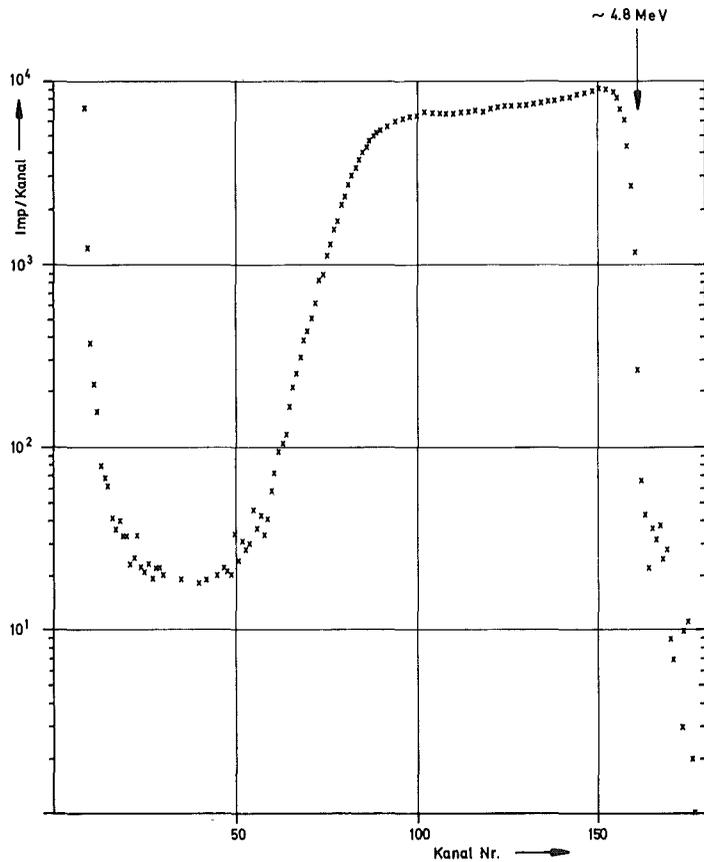


Abb. 3112.12 zeigt das α -Spektrum, aufgenommen mit einem Vielkanalanalysator. Durch die Dicke der Folie wird das α -Spektrum stark verschmiert, bei guter Geometrie (d.h. nur α 's emittiert in kleinem Winkel zur Flächennormalen werden gemessen) ist trotzdem eine gute Extrapolation zur Energie $E = 0$ möglich, d.h. die Aktivität kann quantitativ gemessen werden.

Abb. 3112.12:
 α -Spektrum der ^{237}Np -Al Folie

Sie ist für die Quelle $^{237}\text{Np}/25/2$:

$$A_{^{237}\text{Np}} = 4.631 \cdot 10^4 \frac{\text{Zerf}}{\text{sec}} (\pm 0.5 \%)$$

Daraus folgt eine spezifische Aktivität von

$$A_{\text{sp}} = 0.914 \cdot 10^4 \frac{\text{Zerf}}{\text{sec} \cdot \text{cm}^2} (\pm 5 \%)$$

Aus der Breite des "Trapezes" kann man eine Dicke der Quelle von 9 - 12 μ abschätzen.

Die Homogenität der Probe wurde mit einer α -Scananlage nach Abb. 3112.13 untersucht.

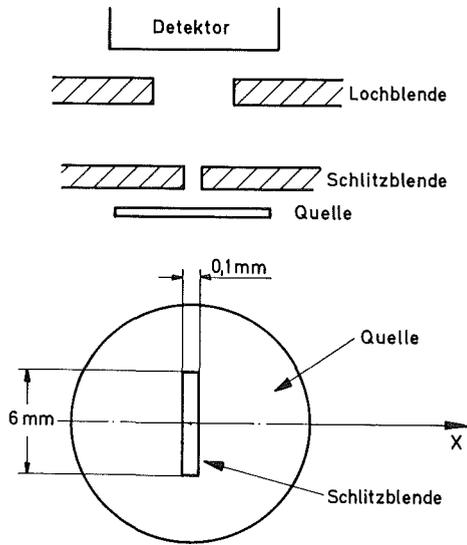


Abb. 3112.13:

Geometrie der α -Scananlage zur Untersuchung der Homogenität von ^{237}Np -Al-Folien

Die Quelle wurde parallel und senkrecht zur Walzrichtung vermessen. Die Homogenität ist in beiden Richtungen sehr gut (Abb. 3112.14 und Abb. 3112.15).

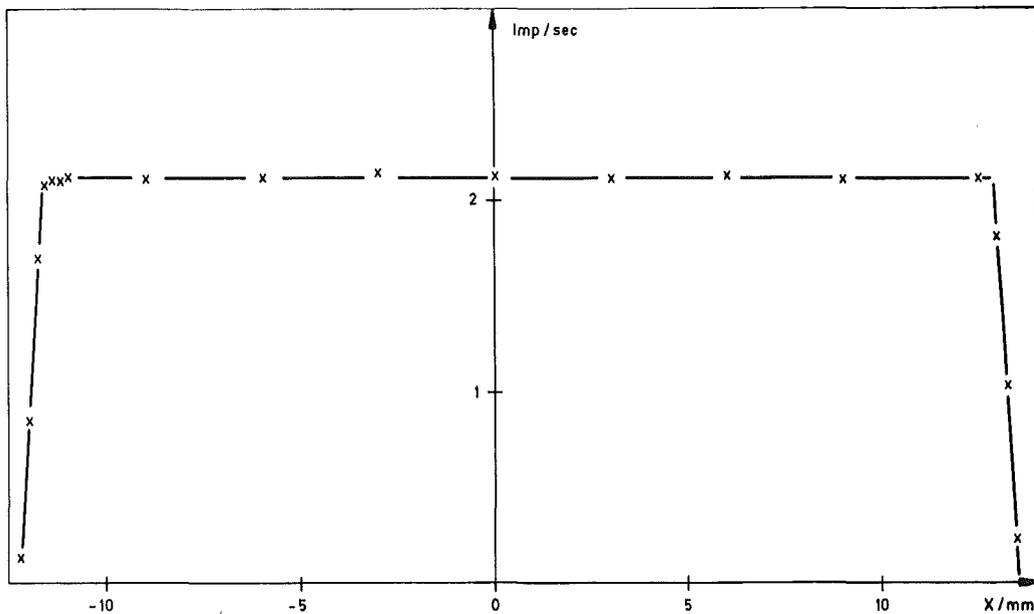


Abb. 3112.14: α -scan an ^{237}Np -Al-Folie parallel zur Walzrichtung

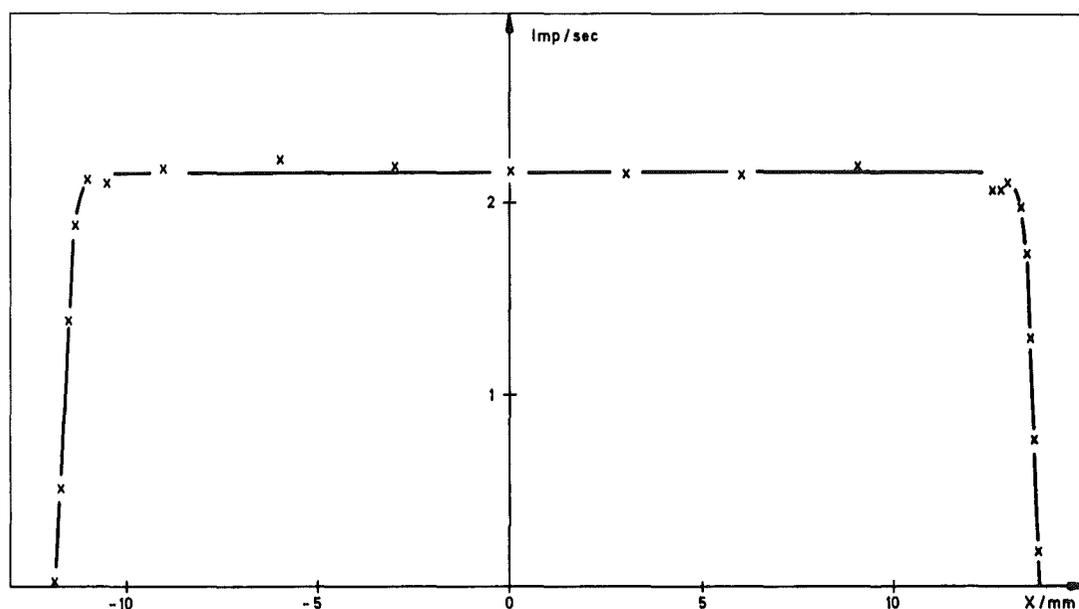


Abb. 3112.15: α -scan an ^{237}Np -Al-Folie senkrecht zur Walzrichtung

4. Verwendung von ^{237}Np -Al-Folien in Spaltfragmentdosimetern

G. Burger *

Seit einigen Jahren wird die Verwendung von Spaltfragmentdosimetern zur Neutronendosisüberwachung untersucht. Gegenüber dem überwiegend noch obligatorischen Kernspurfilm hat ein solches Dosimeter den Vorteil der völligen Gamma-Unempfindlichkeit, sowie der einfachen Zählbarkeit der Spaltfragmentätzlöcher in dünnen Kunststoffdetektorfolien mittels des sogenannten Funkenzählers. Von allen spaltbaren Materialien ist Np^{237} wegen seiner niedrigen Schwellenergie am besten zum Nachweis schneller Neutronen in einem möglichst breiten Energiebereich geeignet. Der Routineeinsatz von Np -Radiatoren verbot sich in der Vergangenheit weitgehend wegen der schwierigen Herstellung von dünnen auf Träger elektrolitisch aufgebracht oder aufgedampften kontaminationsfreien Schichten. Durch die Entwicklung von Np -Al-Legierungen mit unterschiedlichen Np -Konzentrationen (bis zu 10%), deren metallurgische Eigenschaften das Auswalzen dünner Folien erlaubt, wurde dieses Problem gelöst. Anfang 1973 standen uns die ersten Folien dieser Art mit einer Dicke von etwa 0,2 mm in 4 verschiedenen Np -Konzentrationen zur Verfügung. Von den Folien wurde zur Untersuchung der Legierungshomogenität und zur

*) Institut für Strahlenschutz der GSF, München

Abschätzung ihres relativen Np-Gehaltes α -Radiogramme hergestellt. Die Homogenität war sehr gut, die Schwärzungswerte sowie die nominalen Np-Konzentrationen sind in Tabelle 3112.1 aufgeführt. Ebenso aufgeführt sind die Gammadosisleistungen in 1 cm Abstand der Prototypfolien von 2,2 x 2,5 cm Abmessungen.

Tab. 3112.1: Charakteristische Daten der Np-Al-Folien

Np-Konzentration (%)	0,15	0,25	0,4	1,0
relative α -Schwärzung	0,02	0,06	0,09	0,22
Gammadosisleistung in 1 cm Abstand μ R/h	13	21	42	98
Dosisempfindlichkeit des Dosimeterprototyps (rad/(sp/2.5 cm ²))	0,27	0,15	0,11	0,038

Die Folien wurden sodann in geeignete Detektoranordnungen an einer ²³²Cf-Quelle mit unterschiedlichen Neutronendosen exponiert. Nach Ätzung der 10 μ dicken Polykarbonat-Auffängerfolie wurden die Spaltfragmentspuren im Funkenzähler ausgezählt. Die Ergebnisse sind in Abb. 3112.16 dargestellt. Der Funkenzähler arbeitet bis etwa 1000 Spuren pro cm² linear, danach kommt es durch zunehmende Überlappung der "Funkenbilder" auf der Elektrode zu wachsenden Zählverlusten.

Aus den Steigungen der Ausgleichsgeraden können die Empfindlichkeiten der Folien der ²³²Cf-Spaltneutronen mit guter Genauigkeit bestimmt werden. Die Werte sind ebenso in Tab. 3112.1 aufgeführt.

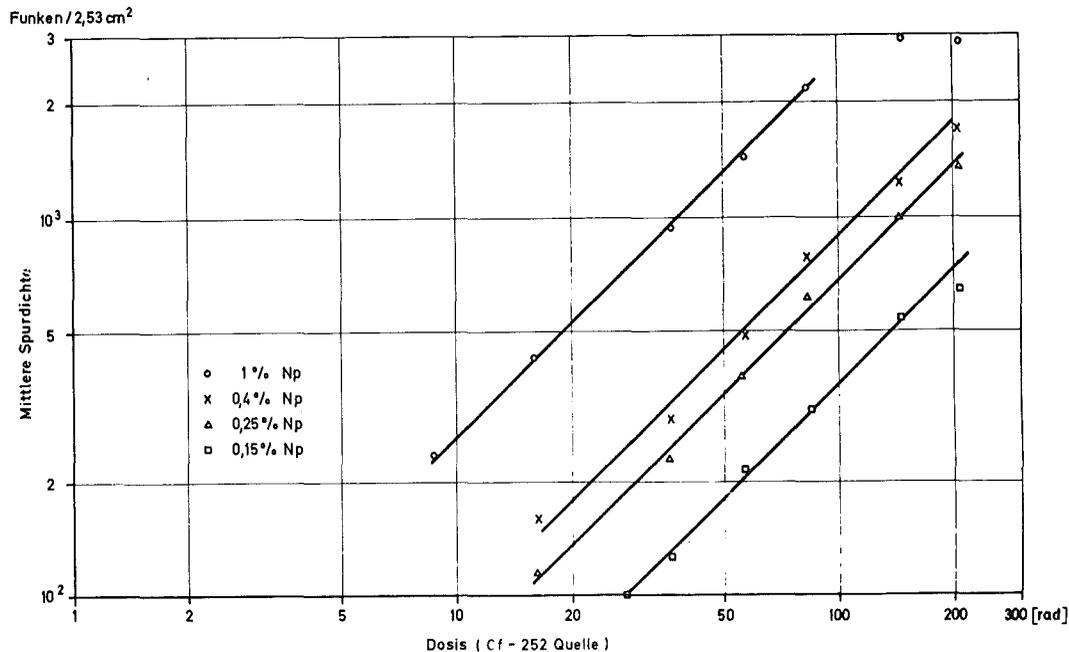


Abb. 3112.16: Mittlere Spurdichten des Spaltfragmentdosimeters in Abhängigkeit von der Dosis

Die Detektoren wurden Frühjahr 1973 bei einem Unfalldosimeter-Vergleichsprogramm der IAEA an einem Reaktor in Vinca, Jugoslawien, eingesetzt. Das Hauptziel bestand dabei darin, durch eine Zwei-Detektormethode spektrale Indices des schnellen Neutronenanteils zu ermitteln und die Neutronendosis zu korrigieren. Man nimmt dabei der Einfachheit halber für die schnellen Neutronen folgendes Modellspektrum an

$$\phi (E) = m \cdot \sqrt{E} e^{-\beta E} \quad 4.1$$

und errechnet theoretisch durch Skalarmultiplikation der Detektorquerschnitte mit dem Modell-Spektrum das Verhältnis der Empfindlichkeiten zweier Detektoren als Funktion von β . Ebenso bestimmt man aus den Modellspektren die maximalen Körperdosen pro Einheitsfluenz als Funktion des Parameters β . Im vorliegenden Fall wurden aus dem gemessenen Verhältnis der ³²P- β -Aktivität von S-Sonden und der Spaltfragmentspurdichte der Np-Detektoranordnung spektrale Veränderungen des Neutronenfeldes mit wachsender Reaktorleistung (wahrscheinlich durch thermische Ausdehnung von Core und Moderator) festgestellt und die Körperdosis korrigiert. Ende 1973 werden die Prototypdosimeter mit monochromatischen Neutronen und Neutronen von verschiedenen Radionuklidquellen bei Luft und an Phantomen kalibriert und im Jahre 1974 erstmalig stichprobenweise in der Routinedosimetrie eingesetzt.

Trotz der z.Zt.noch bestehenden Bedenken offizieller Organe gegen die Verbreitung spaltbaren Materials im Rahmen der Personendosisüberwachung dürfte sich das Np-Al-Spaltfragmentdosimeter in absehbarer Zeit zumindest für speziellere Überwachungsaufgaben in der Personendosimetrie durchsetzen.

5. Nachbestrahlungsuntersuchungen von Am-Legierungen

H. Enderlein, R. Pejsa

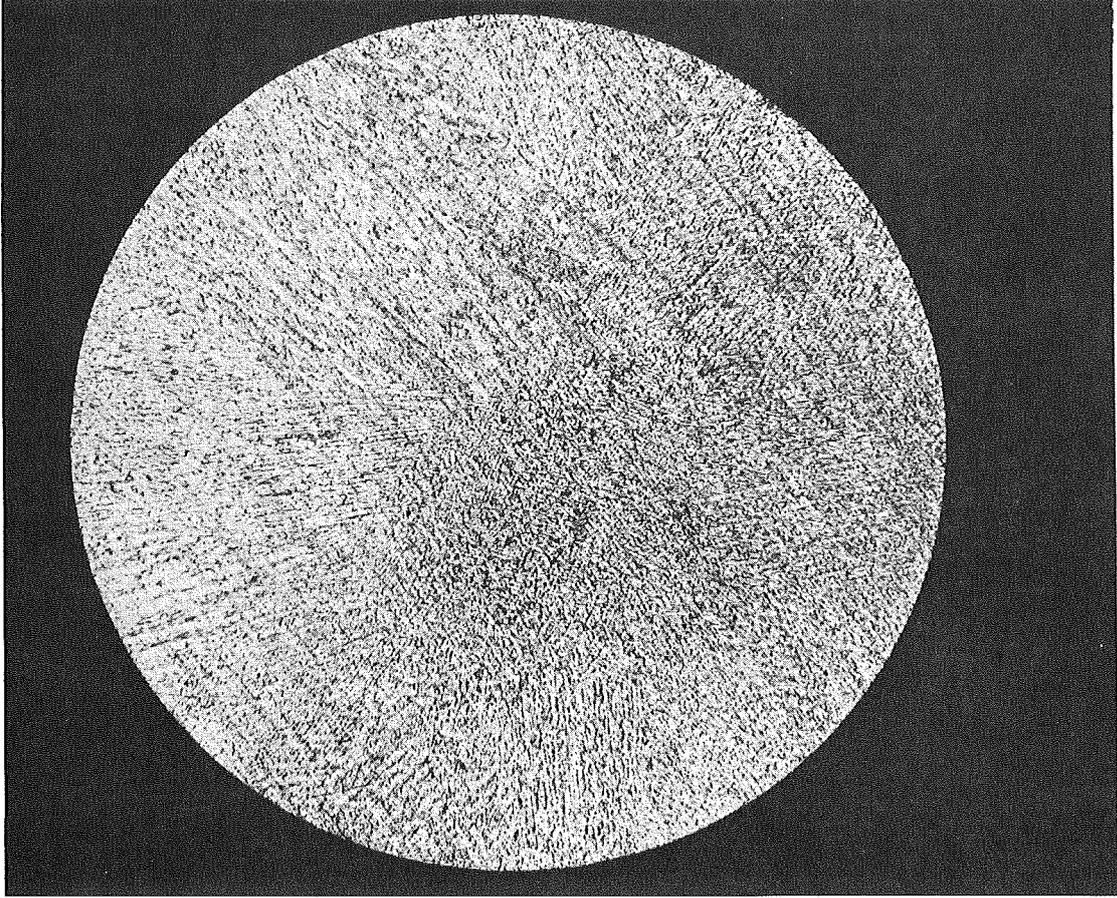
Kapsel FR2/10/20-5

Die freien Spaltgase lagen sämtlich unter den Nachweisgrenzen von 1 Nmm^3 für Kr, $0,001 \text{ Nmm}^3$ für Kr 85 und 10 Nmm^3 für Xe.

Die Dimensionskontrolle der Kapsel ergab Durchmesserwerte von 18,89 bis 18,91 mm (Zeichnungsmaß 18,83) und eine max. Ovalität von 10 μm . Die gleiche Messung am ausgebauten AmAl-Zylinder brachte Werte von 8,04... 8,06 mm (Zeichnungsmaß 8,02) und eine max. Ovalität von 10 μm , die Länge betrug 14,99 mm (Zeichnungsmaß 14,90).

Die beim Mahlen und Auflösen von einem Teilstück von 1,1g des Zylinders = 103 mg Am freigesetzten Spaltgase ergaben nach fünfstündigem Mahlen Werte unter den Nachweisgrenzen. Das Mahlergebnis war unzufrieden, die Probe hatte sich lediglich in der äußeren Gestalt umgeformt. Beim Auflösen traten $1,7 \text{ Nmm}^3$ Kr und 35 Nmm^3 Xe aus.

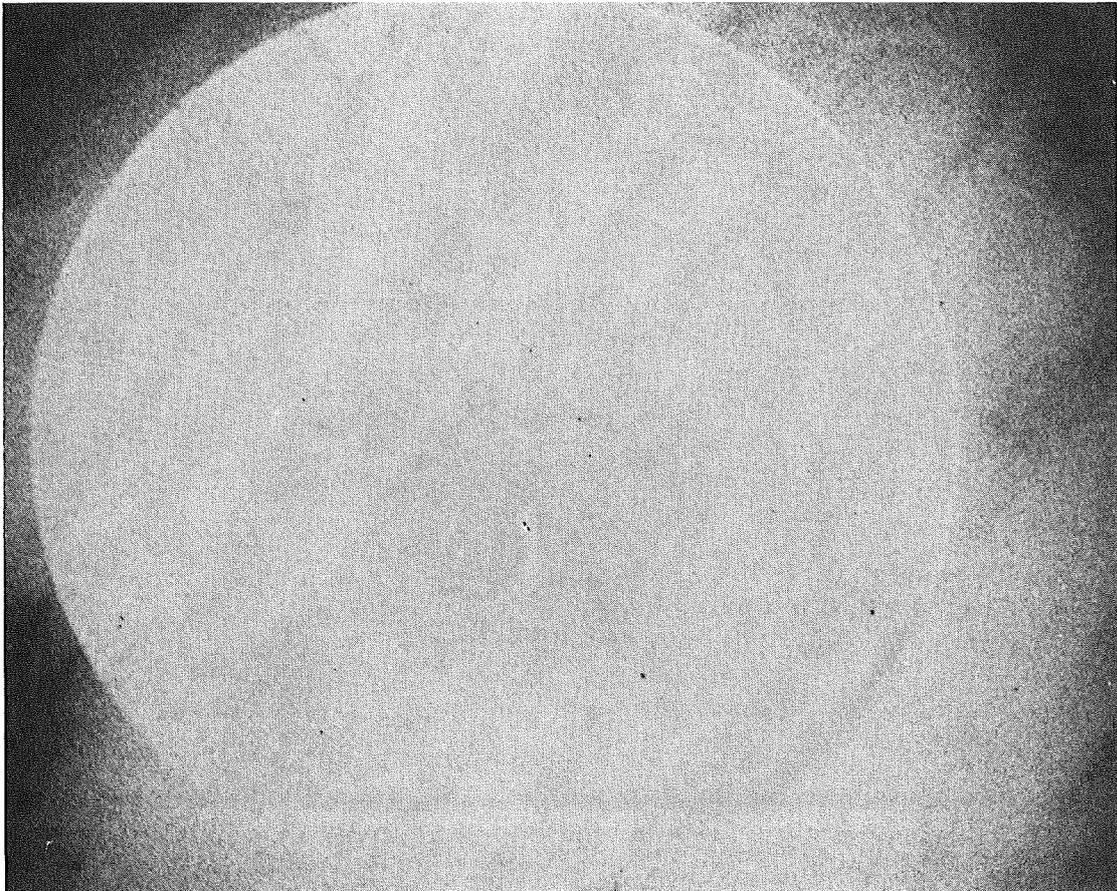
Zur metallografischen Untersuchung wurde eine Probe geliefert. Die Übersichtsaufnahme (2/2) zeigt den Querschnitt und die Makrostruktur des gegossenen Prüflings. Aus dieser Aufnahme ist zu entnehmen, daß der Zylinder keine groben Gefügefehler aufweist, wie Risse, große Poren etc. Die mikroskopischen Aufnahmen Bild 2/3, 2/4 zeigen das Erstarrungsgefüge mit primär ausgeschiedenen Al-Kristallen und feinem Eutektikum Al-AmAl₄. Die kleinen schwarzen Flecken sind kleine vorhandene Poren, aber auch Ausbrüche, die durch die Präparation verursacht worden sind. Die feine Am-Verteilung beweist auch die α -Autoradiografie-Aufnahme (2/1), die keine Anhäufung der Aktivität gezeigt hatte.



1 mm

15 x

HZ-36c-10/20-5-2/2
geätzt



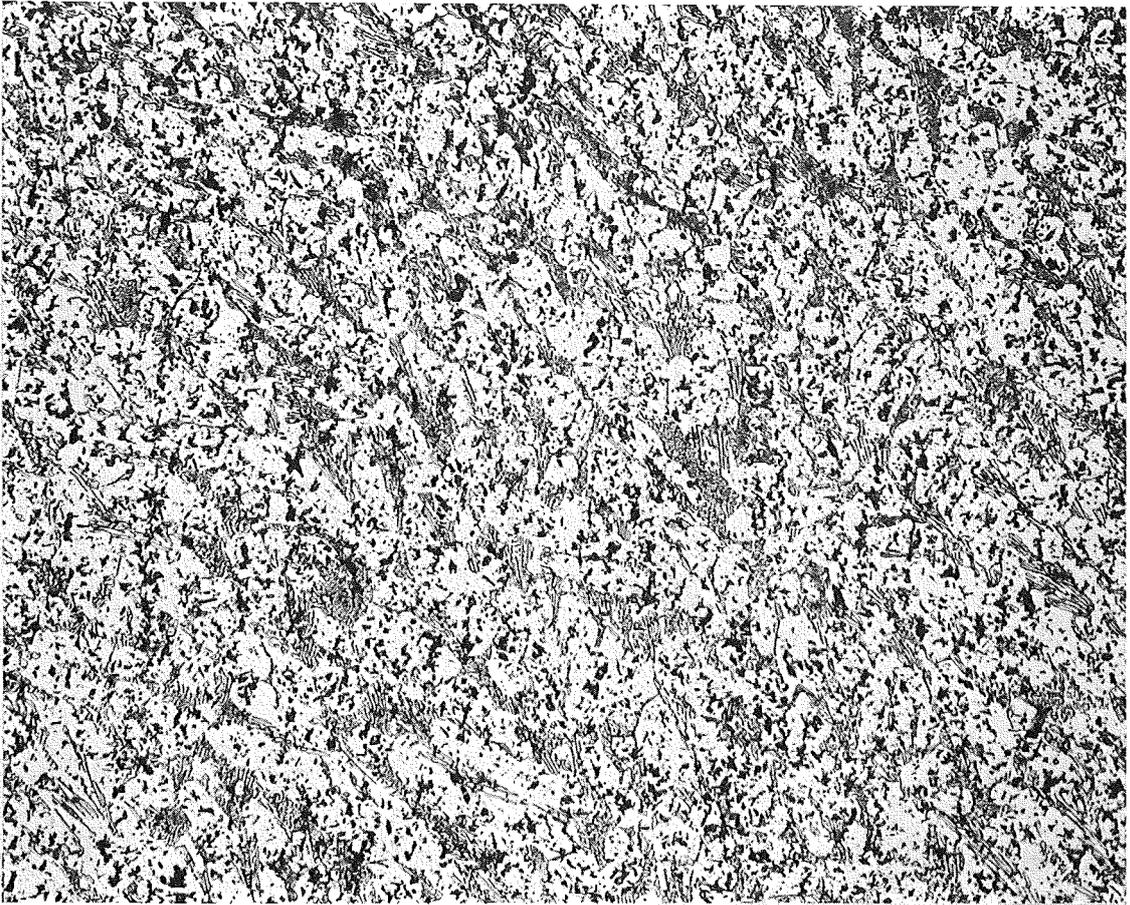
1 mm

15 x

HZ-36c-10/20-5-2/1
 α -Autoradiografie

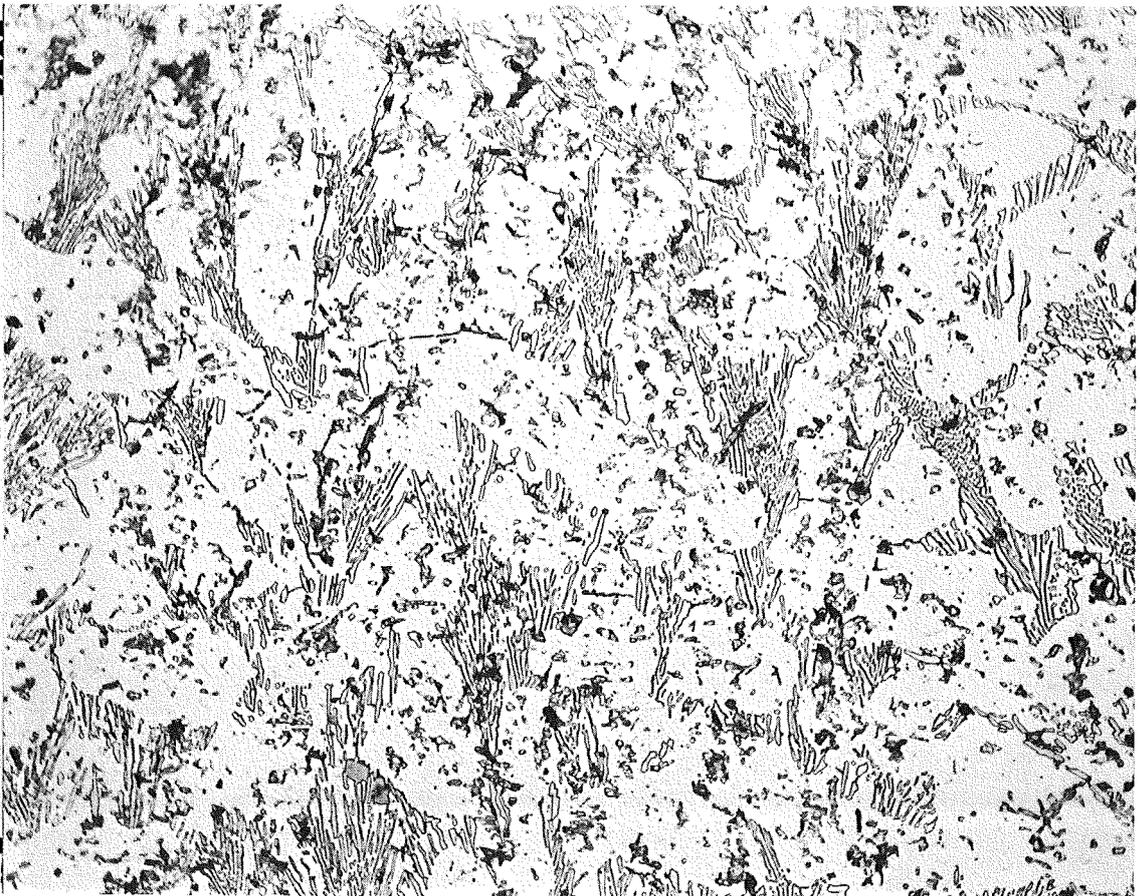
HZ-36c-10/20-5-2/3
Geätzt

100 μm



HZ-36c-10/20-5-2/4
Geätzt

500 x
40 μm





HZ-36c-10/20-5-2/5 500 x
geätzt

40 μm

3112.2 CHEMISCHE VERFAHRENSTECHNIK

Ziel der Arbeiten ist die Bereitstellung eines Verfahrens zur Gewinnung von biomedizinisch reinem ^{238}Pu aus bestrahltem ^{241}Am .

Das Programm für 1973 sah vor, auf Grund aktiver Vorversuche das Referenzfließschema für die Anlage im TPL 1 festzulegen. Weiter sollte die kalte Erprobung von Komponenten fortgeführt, die Anlage installiert, die Instrumentierung zur Überwachung des Trennablaufes sowie das Beschickungs- und Wastetransportsystem der Zellen erstellt werden.

1. Prozeßentwicklung

W. Weinländer, W. Bumiller

In einer schwach abgeschirmten Testanlage (51) wurden nach inaktiven Tests der einzelnen Prozeßschritte 11 Aufarbeitungsversuche von bestrahlten ^{241}Am -Pellets zur Festlegung des in (52) vorgeschlagenen Fließschemas durchgeführt. Da an anderer Stelle (53) ausführlich über die Ergebnisse dieser Versuche berichtet wird, soll hier nur eine kurze Zusammenfassung der Resultate erfolgen.

1.1 Aufschluß

Der Aufschluß der bestrahlten $^{241}\text{AmO}_2$ -Al Pellets erfolgt in zwei Schritten, dem selektiven Aufschluß der Al-Matrix in 8 n NaOH und dem Lösen der verbleibenden Oxide in 7 n HNO_3 . Die Versuchsdaten sind in Tab. 3112.2 zusammengefaßt.

Auffallend ist dabei, daß der Zeitaufwand für den alkalischen Aufschluß der Al-Matrix bei bestrahlten Pellets erheblich größer ist, ebenso, wie die Tendenz der Schaumbildung in der NaOH im Vergleich zu unbestrahlten Pellets. Der Zeitaufwand für das Abfiltrieren der NaOH variiert zwar bei den verschiedenen Versuchen erheblich, doch ist auch hier ein größerer Zeitaufwand bei der Verarbeitung von bestrahlten Pellets zu beobachten. Insgesamt steigt der Zeitaufwand für das Filtrieren der NaOH mit zunehmender Kontaktzeit der verbleibenden Oxidpartikel mit der NaOH.

Vers.	Pellettyp	Alkalischer Aufschluß der Al-Matrix				saurer Aufschluß		Bemerkungen
		Volumen (ml)	Zeit (min)	Schaumvol. (ml)	Filtrierzeit (min)	Vol.HNO ₃ (ml)	Zeit (min)	
V 1	Al, ohne Liner	100	5	<50	15	-	-	schwarzer Rückstand in NaOH der sich nach längerem Kochen o. nach Zugabe von C ₂ H ₅ OH auflöst.
V 2	Al, mit Liner	100	15	<50	10	-	-	
V 3	UO ₂ /Al, "	100	12	<50	18	100	60	η _u ≈ 80%, Fritte (G3) zu porös
V 4	AmO ₂ /Al, "	100	20	<50	20	100	50	Am(NO ₃) ₃ -Lösung klar, η _{Am} ≈ 96%
V 5	AmO ₂ /Al, "	130	15	<50	35	100	60	Am(NO ₃) ₃ -Lösung erst nach 1 Tag klar
1 a)	AmO ₂ /Al bestr.	100	10	<50	15	130	60	Lösungen klar,
2 b)	1 Pellet HFR 1	100	40	~150	30	-	-	starke Schaubild. in der NaOH
2 a)	2 Pellets HFR1	100	50	~100	30	100	70	"
3	2 " HFR1	100	45	~150	40	-	-	"
3 a)	2 " HFR1	100	60	~150	150	110	60	starke Filterbelegung
4 c)	HFR1-7c-1	100	60	~100	30	100	100	Lösungen klar
5	HFR-2-7c-2	100	45	~120	40	100	70	"
6	HFR-2-5c-2	100	60	~150	60	100	120	"
7	HFR-2-5c-3	100	60	~150	30	-	-	AmO ₂ ein Filtrat (Verlust ~10%)
7 a)	HFR-2-5c-4	100	50	~100	20	100	120	Lösungen klar
8	HFR-2-5c-7	100	50	~100	15	100	60	"
9	HFR-2-5c-7	100	70	~100	300	100	110	NaOH-Lösung über Nacht gestanden
10	HFR-2-5c-8	100	100		20	100	30	Lösungen klar
11	HFR-2-5c-9	100	120		100	100	70	

a) AmO₂/Al-Pellet bestrahlt im BR2, 1966; $\phi_{int} \approx 10^{21} \text{ (cm}^{-2}\text{)}$

b) Pellets aus Experiment HFR1 (54), $\phi_{int} \approx 3 \cdot 10^{20} \text{ (cm}^{-2}\text{)}$

c) Pelletes aus Experiment HFR2 (55); $\phi_{int} \approx 5 \cdot 10^{20} \text{ (cm}^{-2}\text{)}$

V1-5 : Vorversuche mit unbestrahlten Pelletes unterschiedlicher Zusammensetzung
alle bestrahlten Pellets in Ausführung mit Liner (54)

Tab. 3112.2:

Versuchsdaten Pelletaufschluß

In Tab. 3112.3 sind die Actinidenausbeuten in der salpetersauren Lösung angegeben. Während die Ausbeuten für Am und Cm gleichbleibend hoch, etwa 99,5% sind, schwanken die Ausbeuten für Pu erheblich, wobei eindeutig eine Abhängigkeit von der Kontaktzeit mit der NaOH zu erkennen ist.

Tab. 3112.3: Ausbeuten der Actiniden beim Aufschluß ^{a)}

Vers. Nr.	Kontaktzeit (h)	Ausbeuten			Pu in NaOH-Lös. (%)
		Am (%)	Cm (%)	Pu (%)	
6	2	99,6	99,4	96,7	3,3
10	5,5	100,0	99,9	95,2	4,8
8	7,5	98,4	98,1	91,5	8,5
11	8,5	99,9	100,0	91,1	8,9
9	28	99,9	100,0	83,1	16,1
Mittelwert		99,55	99,5	b)	b)

a) Werte ergaben sich aus Einzelanalysenwerten für das alkalische Filtrat und für die salpetersaure Produktlösung

b) Angaben von Mittelwerten wegen der Zeitabhängigkeit nicht sinnvoll

Die Spaltprodukte liegen mit Ausnahme von Ru und Cs in der salpetersauren Feedlösung vor. Für Ru ist ein Dekontaminationsfaktor von ≤ 3 und für Cs ein Wert von etwa 30 zu beobachten.

1.2 Abtrennung des Pu

Die Plutoniumabtrennung wurde mit dem Anionenaustauscher Dowex 1 x 4 (-400 mesh) aus 7 n HNO₃ durchgeführt. Die Säulendimensionen und Betriebsbedingungen sind in Tab. 3112.4 zusammengefaßt.

Tab. 3112.4: Pu-Abtrennung an Dowex 1 x 4

- 1) Säulendimension : l = 90 mm, \varnothing = 6 mm, V = 2,5 ml
 2) Durchbruchskapazität
 für Pu^{IV}: K = 140 mg, bei W = 20 cm min⁻¹

3) Trennablauf:	Volumen (ml)	Fließgeschwindigkeit (cm min ⁻¹)	C _{HNO3} (mol l ⁻¹)	T (°C)
Pu-Adsorption	100 - 150	20	7,0 ^{+0,0} -0,5	60
Wäsche	90	20	7,0	60
Pu-Desorption	60	5	0,5	80

Tab. 3112.5 zeigt die bei den Pu-Abtrennungen ermittelten Actinidenmengen in den drei Prozeßströmen (vgl. Abb. 3112.17). Dabei läßt sich eine sehr starke Verringerung der Pu-Ausbeuten in der Pu-Produktlösung mit steigender Strahlungsleistung (hervorgerufen durch ²⁴²Cm) feststellen, die offensichtlich durch die radiolytische Bildung von Pu^{IV} verursacht wird. Nach vorheriger Pu^{IV}-Einstellung, hier mit H₂O₂, und bei sofortiger Verarbeitung der Feedlösung nach Verkochen des H₂O₂ können auch bei höheren ²⁴²Cm-Konzentrationen Ausbeuten von $\geq 95\%$ erzielt werden.

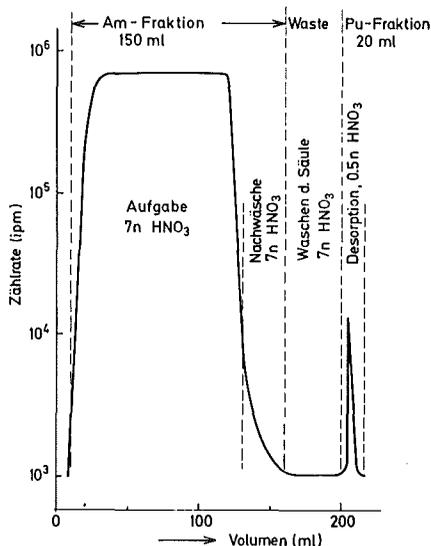


Abb. 3112.17:

Typischer Aktivitätsverlauf
 des Pu-Abtrennschrittes

Tab. 3112.5: Versuchsergebnisse Pu-Abtrennung

Versuch Nr.	Feedlösung a)					Am-Fraktion			Wäsche		Pu-Fraktion		
	Volumen (ml)	C242 _{Cm} (mg/l)	Q (W/l)	m _{Am} (mg)	m _{Pu} (mg)	m _{Am} (mg)	η _{Am} (%)	m _{Pu} (mg)	m _{Am}	m _{Pu}	m _{Am} (mg)	m _{Pu} (mg)	η _{Pu} (%)
Modell- versuch	100	0	0	150	50	138	92,0	1,5	6,5	1,2	0,2	47,5	95,0
1	100	0,1	0,1	38	8,95	35,6	93,5	0,13	1,5	0,06	0,13	8,73	97,5
2	83	6,2	7,7	182	29,3	185,6	101,8	14,0	2,5	0,6	0,55	15,2	52,0
4	95	7,7	9,5	104,5	17,7	91,9	88,0	14,2	6,8	1,2	0,1	4,6	26,0
7 b)	100	11,5	14,3	67,1	36,2	59,6	89,0	0,8	-c)	-c)	0,1	35,0	96,7
10 b)	80	7,8	9,7	59,6	26,7	59,1	99,0	3,1	-c)	-c)	0,1	24,9	93,3
11	60	11,6	14,4	67,7	24,1	66,1	97,5	18,2	1,8	2,6	0,1	1,92	8,0

a) die Feedlösungen wurden bei 100 - 110 °C 1 - 2 h gekocht

b) bei Versuch 7 und 10 erfolgte Pu^{IV}-Einstellung durch Zugabe von 1ml H₂O₂ (30%) und anschließendem Kochen von 1 h

c) Werte wurden nicht ermittelt

1.3 Denitrierung

Die Denitrierung dient als Konditionierungsschritt zwischen Pu-Abtrennung und nachfolgender Am-Cm-Spaltprodukttrennung, wobei die erforderliche Reduzierung der Säurestärke mit einer sehr geringen Volumenvergrößerung verbunden ist und zudem für eine Reihe von Spaltprodukten ein zusätzlicher Dekontaminationseffekt zu erreichen ist (51,52).

Entsprechend dem gewünschten End-pH-Wert von ≥ 7 , wurden nach (99,E) die Mischungsverhältnisse von HCOOH zu HNO₃ größer 2 gewählt. Wie aus Abb. 3112.18 zu ersehen ist, werden diese pH-Werte jedoch hier nicht erreicht.

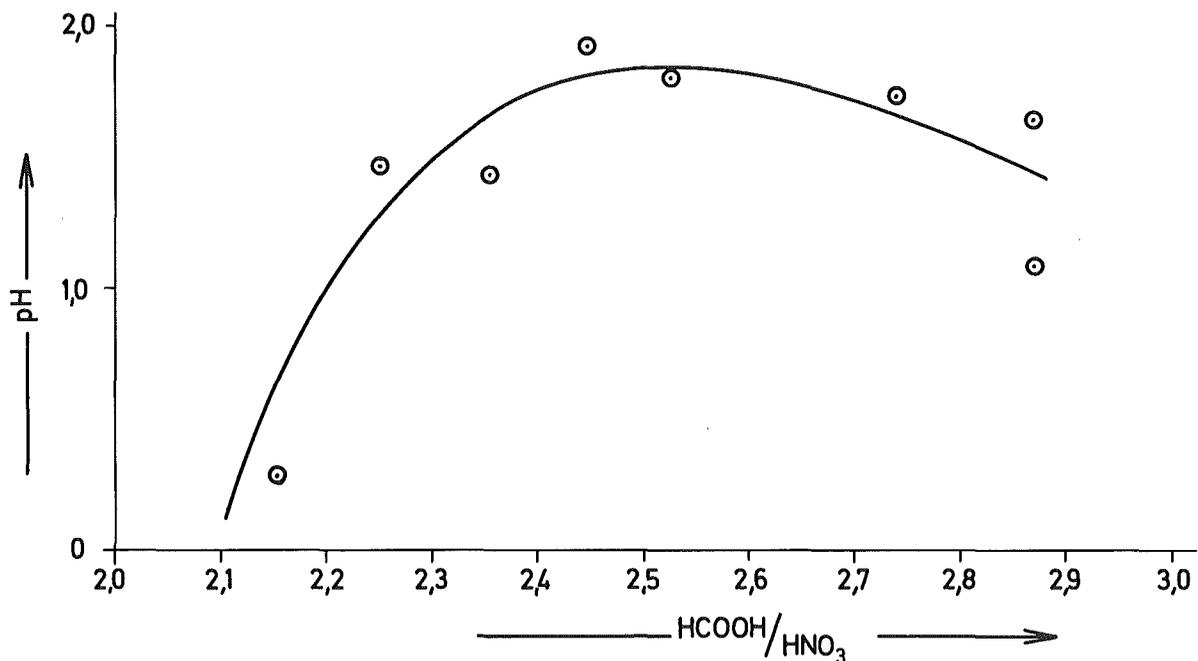


Abb. 3112.18: Abhängigkeit des erzielbaren End-pH-Wertes für die Denitrierung von Am/Cm-Prozeßlösungen als Funktion des Mischungsverhältnisses von HNO₃ und HCOOH

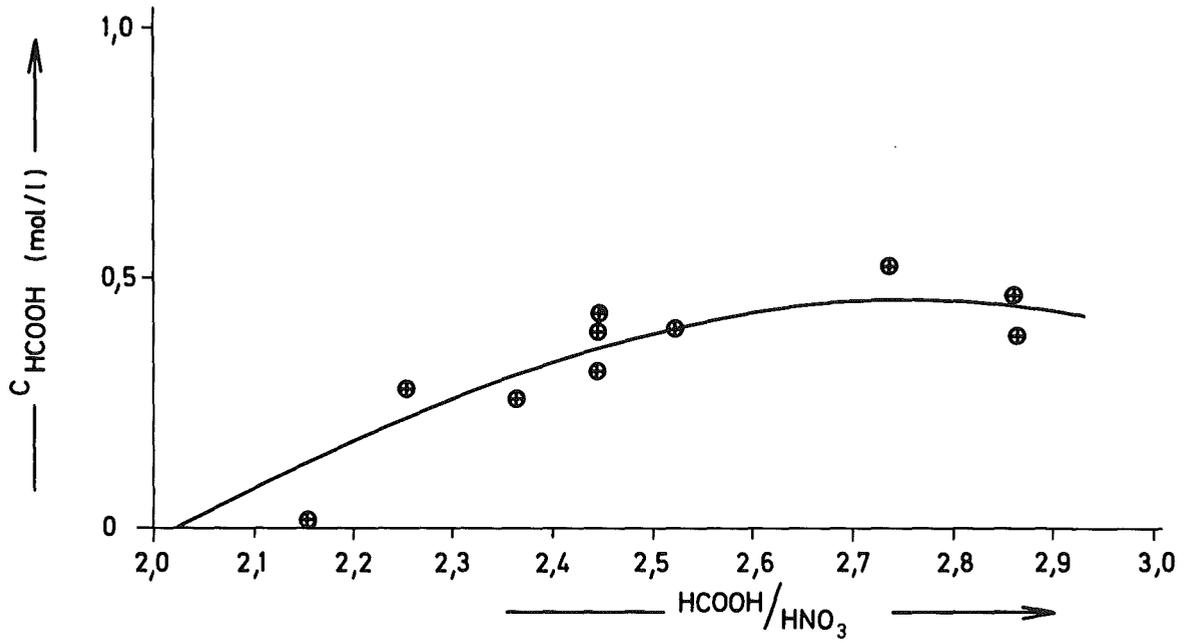


Abb. 3112.19: Ameisen-Säure-Restkonzentration nach Denitrierung als Funktion des Mischungsverhältnisses HNO₃ und HCOOH

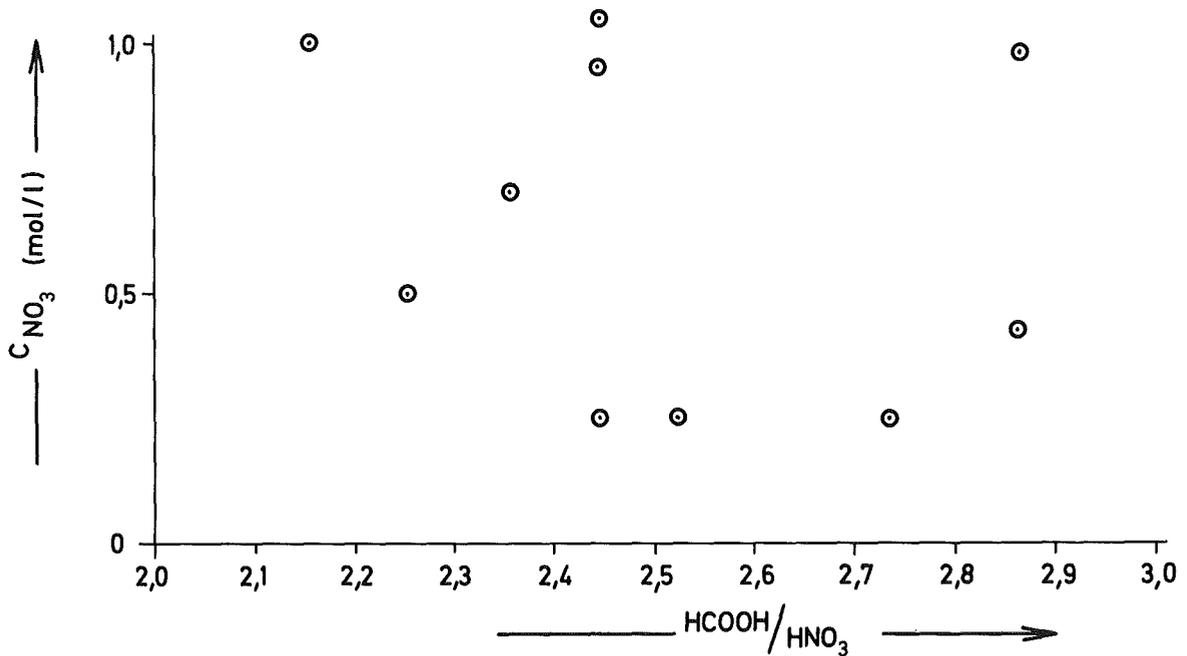


Abb. 3112.20: Nitrat-Restkonzentration nach Denitrierung in Abhängigkeit vom Mischungsverhältnis von HNO₃ und HCOOH

Wie aus Abb. 3112.19 und 3112.20 zu ersehen ist, verläuft die Denitrifizierung nicht vollständig, da nach Reaktionsende noch beträchtliche Mengen an Nitrat und Ameisensäure nebeneinander vorliegen, wobei für die Restnitratkonzentration keinerlei Korrelation zum Mischungsverhältnis der Reaktionspartner beobachtet wurde.

Wegen dieser insgesamt etwas zu hohen Restkonzentrationen wurde die Prozeßlösung deshalb vor der Aufgabe zur Kationenaustauschtrennung um den Faktor 2 verdünnt.

1.4 Trennung von Am, Cm und den Spaltprodukten

Die Trennung erfolgt mit Hilfe des starksäuren Kationenaustauschers AG50 x 12 (21 - 29 μm) und α -Hydroxi-isobuttersäure (αHiB) als Elutionsmittel. An einer Adsorptionssäule (Volumen = 3 ml) werden dabei die zu trennenden Elemente zuerst fixiert, um anschließend auf einer Trennsäule (V=21 ml) mit $\alpha\text{-HiB}$ isoliert zu werden.

Abb. 3112.21 zeigt ein typisches Chromatogramm einer Am-Cm-Trennung. Bedingt durch den zwischen Aufgabe und Elution eingeschalteten Waschschritt der Adsorptionssäule mit 0,5 n NH_4NO_3 , lassen sich die Lage und die Breite der einzelnen Konzentrationsbanden mit Schwankungen von max. 20% reproduzieren. Um die Strahlenbelastung des Austauschers möglichst gering zu halten wurde die Fördergeschwindigkeit mit 30 cm min^{-1} so gewählt, daß die Grenze des möglichen Betriebsdrucks (200 bar) voll ausgenutzt wurde.

Die Säulenbeladung lag zwischen 2 und 6 %; die Ausbeuten schwankten für ^{241}Am zwischen 90 und 98% und für ^{242}Cm zwischen 85 und 95% der aufgegebenen Menge. Hauptkontaminanten sind ^{95}Zr , ^{95}Nb , bei einem Gesamtdedekontaminationsfaktor (DF) von 100 - 300 und Ruthen ($^{103,106}\text{Ru}$) das mit einem DF > 2000 abgetrennt wird. Die DF's der übrigen Spaltprodukte sind im allgemeinen $>10^4$.

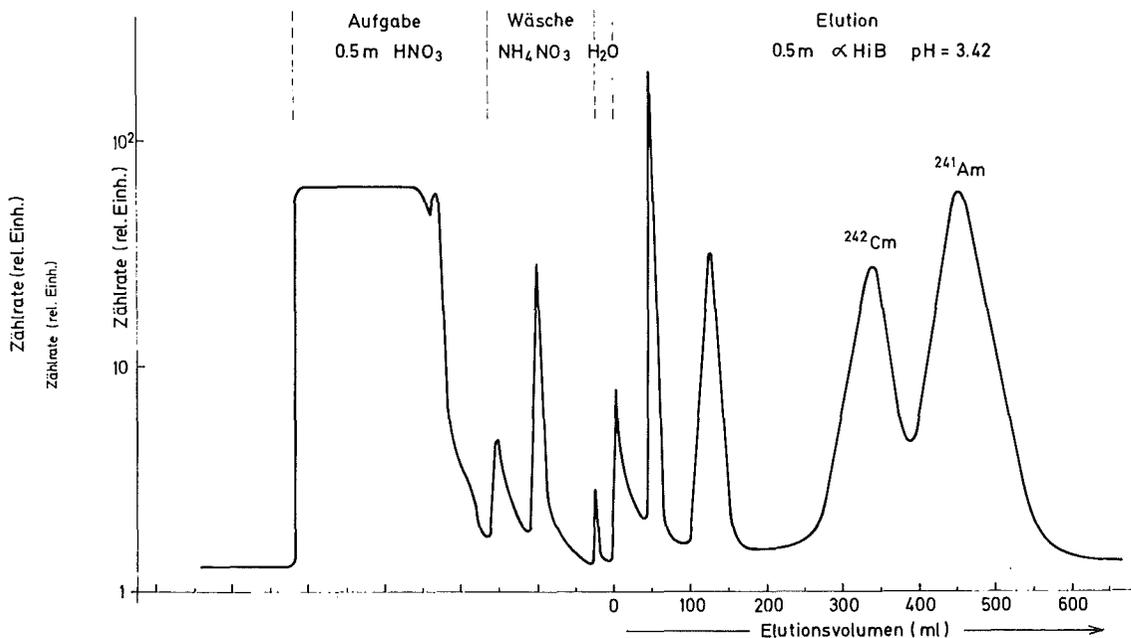


Abb. 3112.21: Chromatogramm einer Am-Cm-Trennung

1.5 Bilanz

Verfolgt man den Weg der Wertnuklide ²³⁸Pu, ²⁴¹Am und ²⁴²Cm im gesamten Aufarbeitungsprozeß, so ergeben sich die in Abb. 3112.22 und 3112.23 schematisch dargestellten Verteilungen auf die Produkt- und die verschiedenen Wasteströme, wobei die Gesamtausbeuten mit 67% für Pu und etwa 50% für Am und Cm zunächst relativ gering erscheinen. Im einzelnen lassen sich für die Verluste folgende Ursachen erkennen:

- Hold-up in Leitungen und Behälter

Diese Verluste sind bedingt durch die relativ zu Leitungs- und Behältervolumina kleinen Prozeßvolumina recht groß und machen sich besonders bei mehreren Untereinandergeschalteten Prozeßschritten stark bemerkbar, wobei es durch die Notwendigkeit, die Aufarbeitungen gezielt auf das Verhalten der Wertnuklide in den einzelnen Prozeßschritten zu untersuchen, nicht sinnvoll war, diese Restvolumina in der darauffolgenden Aufarbeitung zu rezyklieren.

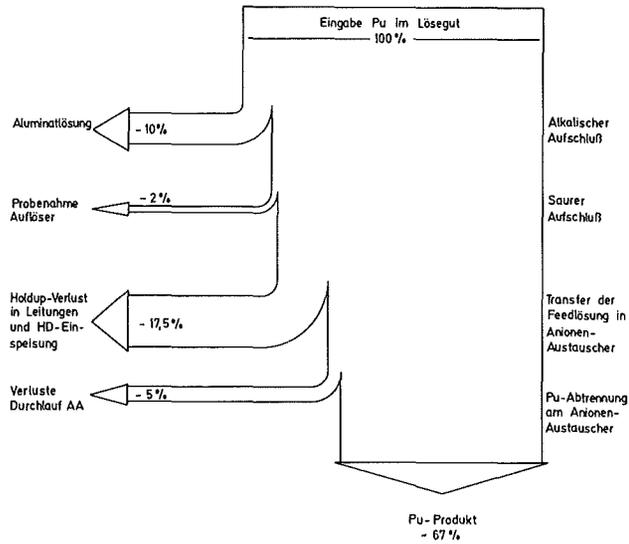


Abb. 3112.22:

Pu-Bilanz

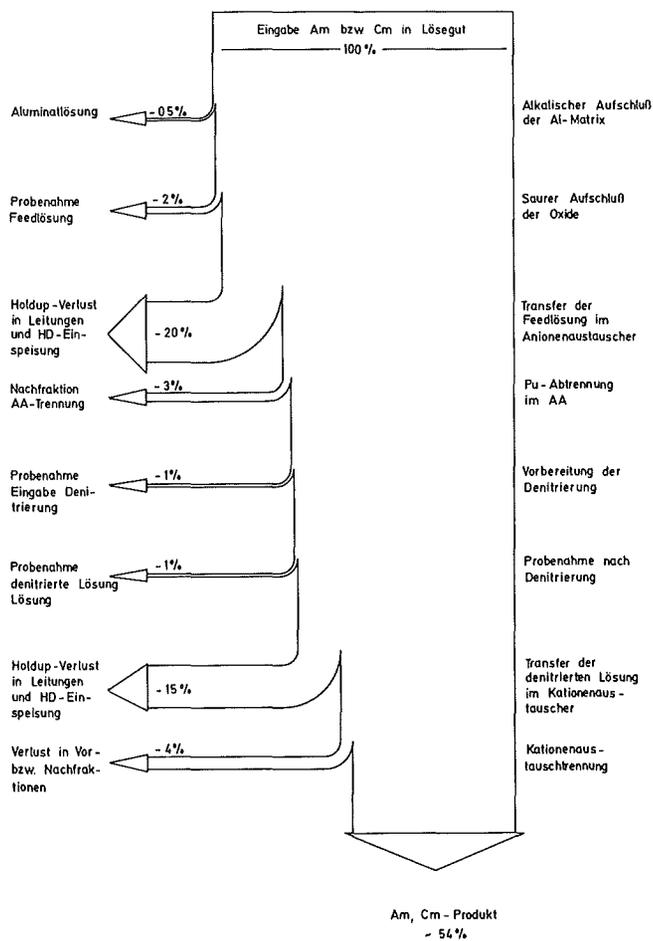


Abb. 3112.23:

Am-Cm-Bilanz

- Verluste durch Probenahme

Hier gilt hinsichtlich ihrer Höhe sinngemäß das Gleiche wie oben

- Verluste bei der Fraktionierung des Eluats

Die Höhe dieser Verluste ist sehr stark abhängig von der Festlegung der Fraktionsgrenzen, was andererseits stark von analytischen Möglichkeiten zur Verfolgung der betreffenden Nuklide abhängt. Sie liegen jedoch mit max. 5% bereits relativ niedrig.

- Verluste beim alkalischen Aufschluß

Diese Verluste betreffen, wie die Versuche zeigten, hauptsächlich das Plutonium. Sie sind zunächst stark abhängig von der Kontaktzeit der bestrahlten AmO_2 -Partikel mit der Natronlauge, was auf die Bildung löslicher Pu-Verbindungen (Hydroxi-Plutonate(56)) hinweist und deren Konzentration nach (56) stark abhängig ist vom Überschuß an freier Natronlauge

- Verluste durch radiolytische Oxidationsstufenänderungen

Diese Verluste betreffen ebenfalls nur Pu und hängen zunächst stark von der durch das ^{242}Cm verursachten Strahlungsleistung in der Feedlösung ab. Wie die Versuche ergaben, lassen sie sich durch eine gezielte Wertigkeitseinstellung und bei sofortiger Weiterverarbeitung der behandelten Lösung auf < 5% reduzieren, jedoch sich nicht ganz vermeiden.

Geht man davon aus, daß bei produktionsorientierten Aufarbeitungen Hold-up-Volumina sowie prokukthaltige Vor- bzw. Nachfraktionen bis zur nächsten Aufarbeitung in der Anlage verbleiben und rezykliert werden können und, daß außerdem beim alkalischen Aufschluß nur mit geringfügigem Überschuß an NaOH gearbeitet wird, so verbleibt hinsichtlich Pu nur die radiolytische Wertigkeitsänderung als Hauptverlustquelle. Insgesamt erscheinen daher für Pu sowie für Am und Cm Gesamtausbeuten von etwa 95% erreichbar.

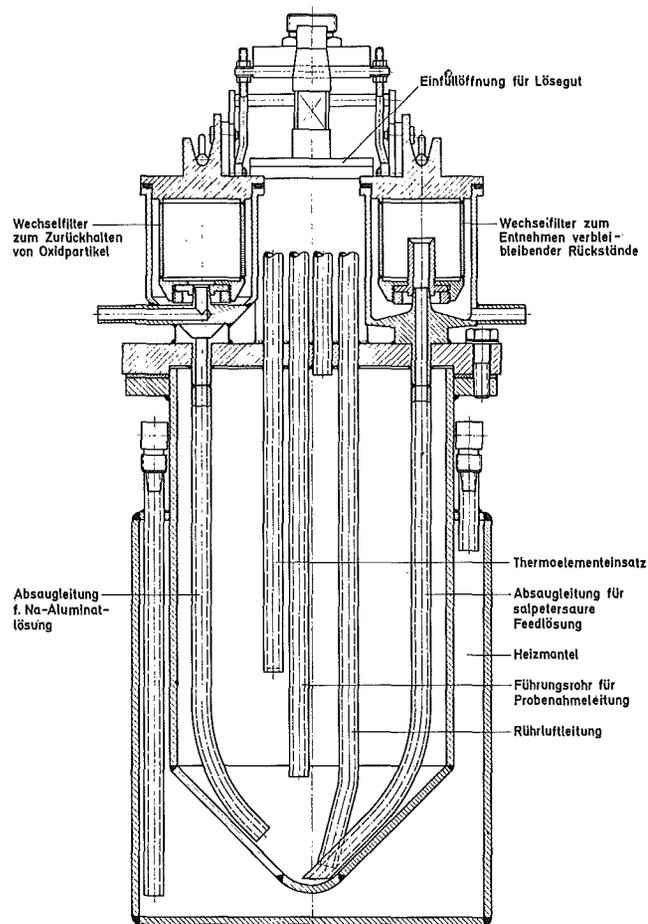


Abb. 3112.24: Schnitt durch den Auflöser für TPL-1

2. Erprobung von Prozeßkomponenten für die TPL 1 Anlage

W. Weinländer, H. Antoni, W. Bumiller, G. Gumb, L. Röder

Die Erprobung der Prozeßkomponenten bzw. deren Prototypen wurde im Rahmen der Fließschematestversuche und in Einzelversuchen durchgeführt.

2.1 Auflöser

Bei der Durchführung von Auflöserversuchen im Prototypauflöser (57) als auch beim Aufschluß von bestrahlten Am-Pellets in einem ähnlich gebauten Glasauflöser wurden eine Reihe von Störungen beobachtet, die zu konstruktiven Änderungen führten.

- Verwendung von feineren Filtern (Sintermetallfilter mit Porenweite $\leq 5 \mu\text{m}$), um den Feinanteil der Oxidpartikel quantitativ zurückzuhalten.
- bedingt durch obige Maßnahme, druckdichte Ausführung aller Verschlußteile (Filter, Einfüllöffnung) um zur Verkürzung der Filtrierzeiten mit erhöhtem Betriebsdruck ($\leq 3 \text{ bar}$) arbeiten zu können.
- Verkürzen des Absaugrohrs für die alkalische Aufschlußlösung zur Vermeidung des Hochsaugens von Oxidpartikel und damit verbundener Erhöhung des Filterwiderstandes.
- Verminderung des durch obige Maßnahme bedingten Hold-up, durch Einsetzen eines konischen Bodens statt des ursprünglich vorgesehenen Flachbodens (siehe Abb. 3112.24).

Die gleichen Festlegungen und Änderungen gegenüber dem ursprünglichen Entwurf gelten sinngemäß auch für das Denitrifier-Gefäß.

2.2 Hochdruckionenaustauscher

Hochdruckeinspeisung: Die in (58) beschriebene Hochdruckeinspeisung wurde im Rahmen der Fließschematestversuche erprobt. Im Verlauf der Versuche ergaben sich folgende Abänderungen

- Der Kolben wurde mit angedrehten, federnden Lippen versehen um eine bessere Abdichtung, besonders bei auftretenden Durchmesserabweichungen des Zylinders und um eine bessere Abstreifwirkung gegenüber

Feststoffpartikel zu gewährleisten.

- Feinbearbeitung der Zylinderinnenfläche (Oberflächenrauigkeit $\leq 1 \mu\text{m}$) zur Verminderung der Reibungswiderstände des Kolbens.

Hochdrucksäulen: Die Tests der Hochdrucksäulen verliefen sowohl während der Fließschematestversuche als auch bei einer Reihe sonstiger Versuche sehr zufriedenstellend. Die Harzbetteigenschaften (Strömungswiderstand, Bodenzahl) lassen sich nach Neueinbringen einer Harzfällung in den Säulenkörper mit Abweichungen $\leq 5\%$ reproduzieren, sofern beim Verlegen der Harzeinfüllleitungen auf eine möglichst ungestörte Leitungsführung (ständig gleichmäßiger und enger Leitungsquerschnitt, keine Knickstellen) geachtet wird.

Hochdruckpumpen: Die verwendeten Hochdruckkolbenpumpen (Hersteller: Fa. Lewa) arbeiteten weitgehend zufriedenstellend. Lediglich nach längerem Fördern von α -Hydroxi-iso-buttersäure wurden gelegentlich kurzzeitige Betriebsdruckabfälle beobachtet, die sich auf die Ablagerung von "fettigen" Bestandteilen der Buttersäure auf den Rückschlagventilen zurückzuführen ließen.

Die Störungen lassen sich vermeiden, wenn die Pumpe jeweils in Zeitabständen von 10 - 15 Betriebsstunden mit warmen fettlösenden Medien gespült wird.

Zusätzlich erwies es sich als zweckmäßig, die zu fördernden Lösungen vor Verwendung zu entgasen sowie Blasenfänger in die Speiseleitung der Pumpe einzusetzen.

2.3 Ventile

Ventile für Prozeßleitungen: Die in (59) beschriebenen Ventile (alle medienberührten Teile bestehen aus Edelstahl, Abdichtung mittels einer Rubinkugel) wurden im Rahmen der Fließschematestversuche einer eingehenden Erprobung unterworfen.

Nach Abstimmung der Federkräfte von Innen- und Außenfeder, die das Andrücken von Rubinkugel sowie des Kolbens auf den Dichtsitz gewährleisten (wobei weder die Kugel am Börtelrand noch der Kolben am Ventilboden aufsitzen darf), und nach Einleppen des Dichtsitzes konnten He-Leckraten von $\leq 10^{-4} - 10^{-5}$ (torr.l sec^{-1}) erreicht werden, was für den Einsatz in lösungsführenden, nicht druckbelasteten Leitungen ausreichend ist.

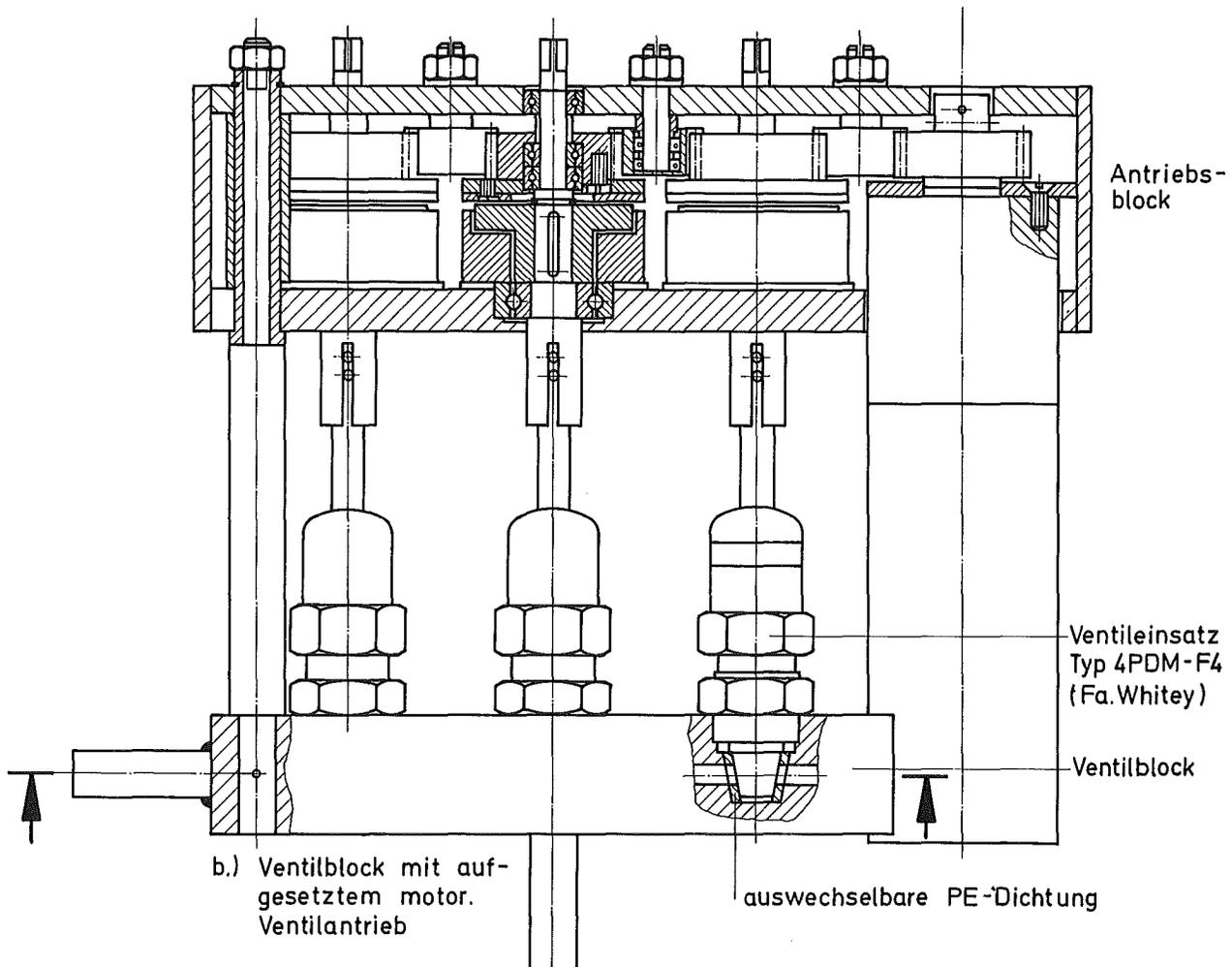
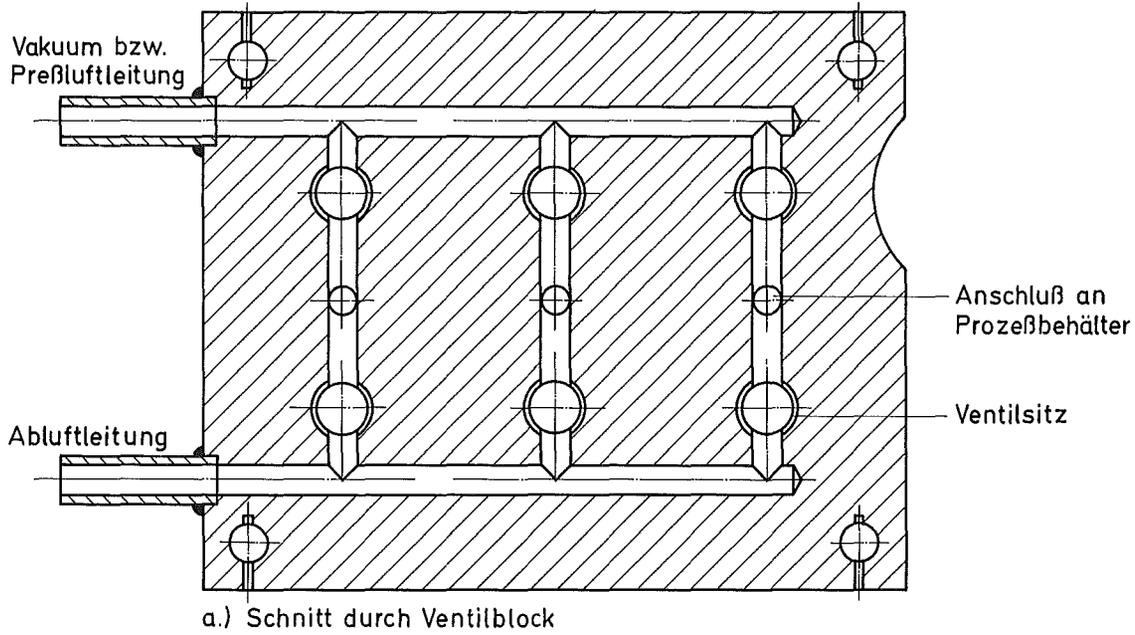


Abb. 3112.25: Ventilblock für Vakuum- bzw. Druckluftversorgung und für Entlüftung der Prozeßbehälter mit Sammelantrieb

Abluftventile: Die in der Testanlage eingebauten 3/2-Wegeventile (Fa. Sciner, Typ V53 ABA 2006) erwiesen sich als nicht verwendungsfähig, da die Kunststoffdichtsitze unter dem Einfluß von Feuchtigkeit und Säuredämpfen aufquollen und zu Schaltstörungen führten.

Für die TPL-1 Anlage wurden deshalb Abluftventilblöcke unter Verwendung von Teilen eines käuflichen Spindelventils (Fa. Whitney, Typ 4PD4 4-F4-316) entwickelt (siehe Abb. 3112.25). Als Dichtelement dient ein Polyäthylen-Einsatz, der nach Herausnehmen des Spindeleinsatzes ausgewechselt werden kann. Die Ventile werden durch einen aufgesetzten Motorantrieb oder mittels Knebel betätigt.

3. TPL-1 Anlage

3.1 Aufbau der Zellen

W. Weinländer, G. Gumb, G. Kunz

Der Aufbau der Zellenanlage wurde im Berichtszeitraum abgeschlossen, wobei folgende Arbeiten ausgeführt wurden:

- Fertigung und Installation der Prozeßtankbehälter (60)
Pro Zelleneinheit wurde ein Umfassungsbehälter mit je 5 Prozeßtanks (Volumen 2 x 15 l, 1 x 30 l, 2 x 50 l) installiert. Alle festen Anschlußleitungen wurden in Edelstahl ausgeführt und unter Schutzgas geschweißt und einer Schweißnahtprüfung unterzogen.
- Beschaffung und Montage der Schaltwarte zur Aufnahme der Zellenbedienungselemente
- Planung und Beschaffung und Montage der Elektroversorgung sowie der Meßleitungen für die meßtechnische Verfolgung der Trennprozesse.
- Planung, Beschaffung und Montage der Medienvorbereitung und -Versorgungseinrichtungen.
- Planung und Installation eines Zweikreiskühlsystems.

3.2 Transporteinrichtung für hochaktive Wastelösungen

W. Weinländer, G. Kunz, C.H. Leichsenring

Da die Lagerkapazität für starkaktive Abfall-Lösungen innerhalb der Anlage relativ begrenzt ist (etwa 100 l pro Zelle) sind häufige Waste-

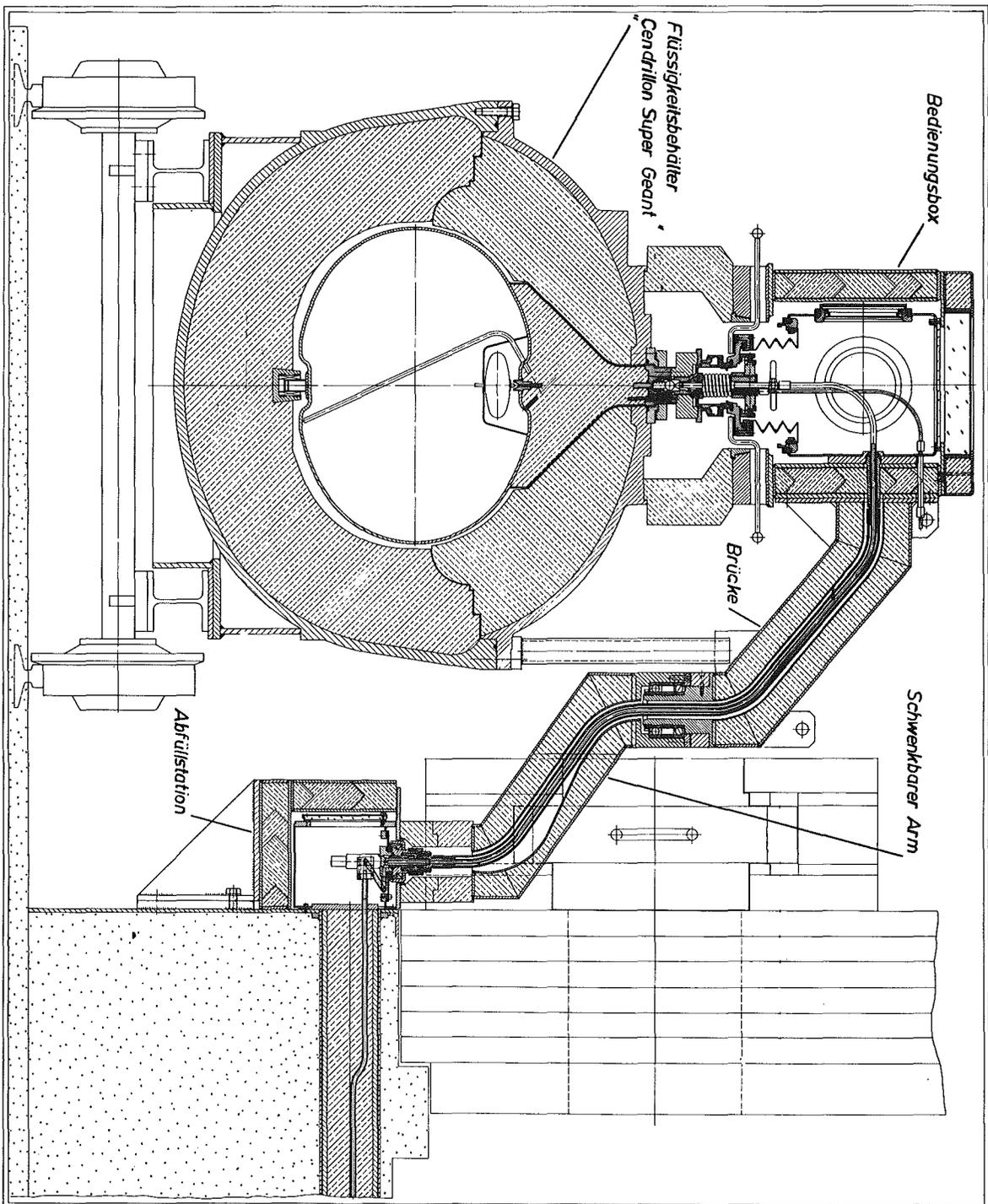


Abb. 3112.26: Abfüllvorrichtung für hochalphaaktive Wastelösungen

transporte zu erwarten. Dafür sollte ein möglichst rasch koppelbares und mit möglichst geringen Kontaminationsrisiko verbundenes Entnahmesystem entwickelt werden. Als Transportbehälter werden bereits vorhandene Abschirmflaschen (Fa. Lemère, Typ: "Cendrillon Super Geant", V = 80 l, Abschirmung 22 cm Blei) eingesetzt.

Zum Anschluß dieser Transportbehälter an die Anlage wurde ein abnehmbares Verbindungsstück (Brücke) konzipiert, das alphasdicht an Behälter und Anlage angekoppelt werden kann. Der Anschluß der Brücke an die Transportflasche erfolgt mittels eines La Calhène-Doppeldeckel-flansches, das Ankoppeln an die Anlage über eine modifizierte Schleusenkupplung (61), die ihrerseits über einen Ventilblock mit auswechselbaren Ventileinsätzen (Typ: Balroc-Minor 4811-28, NW8) mit den einzelnen Behältern im Fundament der Zellenanlage verbunden ist (Abb. 3112.26). Diese Ventile sind ihrerseits in einem alphasdichten Kontainment untergebracht. Das Positionieren der Transportflasche mit aufgesetzter Brücke erfolgt mit Hilfe eines Schienenwagens. Der untere Teil der Brücke wird anschließend über die Schleusenkupplung geschwenkt und die beiden Kupplungsteile miteinander verbunden. Die flexible Schlauchverbindung zum Kopf der Brücke gewährleistet den notwendigen Entfernungsausgleich.

3.3 Schleusensystem für TPL-1Zellen

A. Suppan, H. Wohnlich

Die Zellenboxen sind in ihrer Grundausstattung mit 270er druckluftbetätigten La Calhène-Schleusen ausgerüstet, bei denen der Schleusendeckel durch einen Doppeldeckeladapter ersetzt wurde. Der Adapter ist am Zellenflansch schwenkbar gelagert und mit GfK-Doppeldeckelsystem ausgerüstet (Abb. 3112.27). Diese Anordnung wurde erforderlich, da zwischen der Zellenanlage des TPL1 und heißen Zellen anderen Institute häufig Transporte durchzuführen sind und ein Großteil dieser Zellen mit dem GfK-Doppeldeckelsystem ausgerüstet ist.

Zum Ein- und Ausschleusen nach dem La Calhène System wird nach dem Öffnen eines Abschirmschiebers an der Zellenrückseite der La Calhène-Behälter an den Schleusenflansch angekuppelt. Über Druckluftzylinder

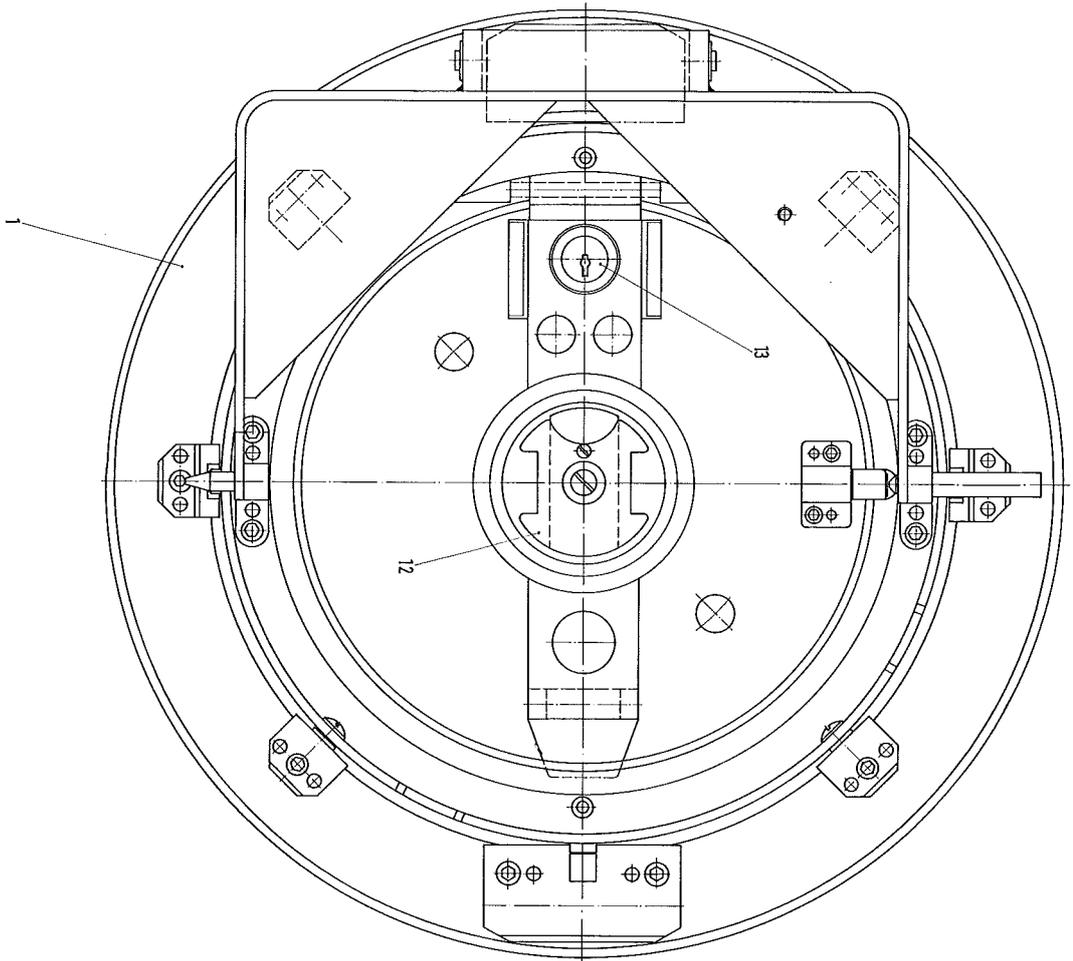
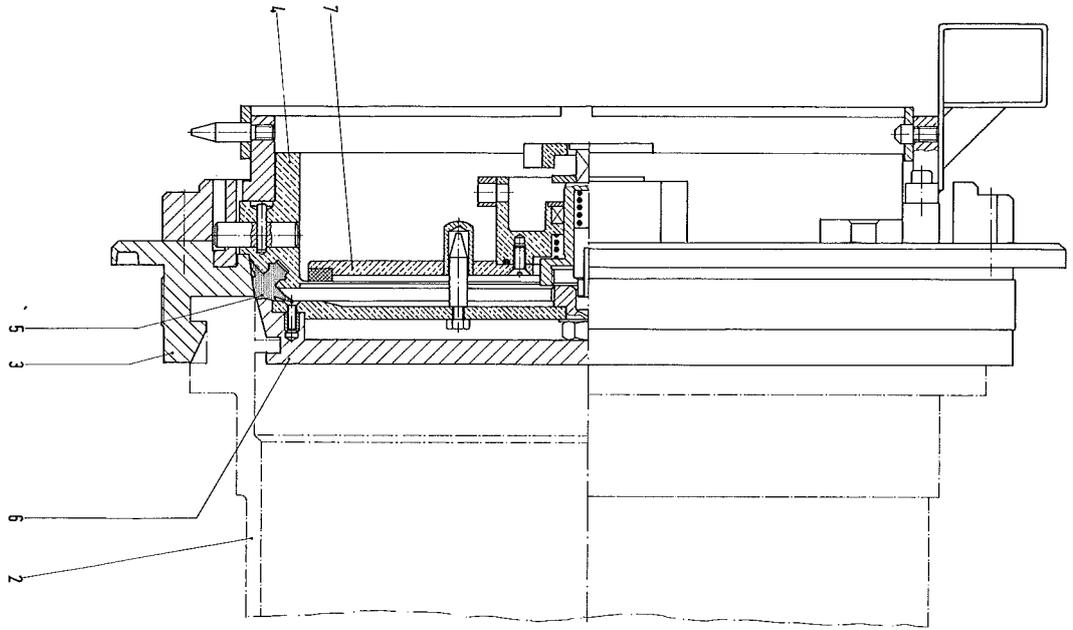


Abb. 3112.27: Doppeldeckeladapter für TPL

werden Behälterdeckel und Adapter alphasdicht gekuppelt und können gemeinsam in die Box geschwenkt werden, so daß die Behälteröffnung zum Ent- oder Beladen freigegeben wird. Vor dem Ankuppeln des Transportbehälters erfolgt das Verschließen in umgekehrter Reihenfolge. Zum Schleusen nach dem GfK-System wird nach Öffnen des Abschirmschiebers an der Zellenrückwand ein Führungsrohr an den Zellenflansch angekuppelt. Durch dieses Führungsrohr kann der GfK-Behälter an den Adapter herangeführt und über das Gestänge des Abschirmflansches an diesen angepreßt werden. Der GfK-Schleusendeckel ist im Adapter mechanisch verriegelt und kann durch Drehen des Griffstückes mit dem Behälterdeckel alphasdicht gekuppelt werden, so daß nach Betätigen des Schloßdruckknopfes mittels Manipulator beide Deckel gemeinsam in die Box geschwenkt werden können und so die Behälteröffnung freigeben.

3.4 Installation der Prozeßeinrichtungen

W. Weinländer, H. Antoni, G. Gumb, W. Bumiller

Nach weitgehender Beendigung der Komponententests und der Fließschematestversuche sowie nach Erstellung erster provisorischer Aufstellungspläne der Gerätekomponente in den einzelnen Boxen wurde hauptsächlich aus räumlichen Gründen eine Neueinteilung der Zellen erforderlich, wobei insbesondere im Unterschied zu ersten Planungen (62) eine Trennung von Auflöse- und Denitrierungseinrichtungen erfolgte. Ferner wird die Box für die Kationenaustauschtrennungen nur mit zwei statt ursprünglich drei Säulen bestückt. Die räumlich-funktionelle Aufteilung ist in Abb. 3112.28 schematisch wiedergegeben.

Bei der Aufstellung der erforderlichen Prozeßeinrichtungen wurde besonders darauf geachtet, ein möglicherweise später, während des Betriebs notwendiges Auswechseln schadhafter Teile so weit wie möglich zu erleichtern.

3.4.1 Auflösebox

Abb. 3112.29 zeigt das Apparateschema für den Auflöseschritt, für die Konditionierung und Wertigkeitseinstellung des Pu^{IV} in der Feedlösung sowie die Anlagenteile für die Vorreinigung der Auflöserabgase.

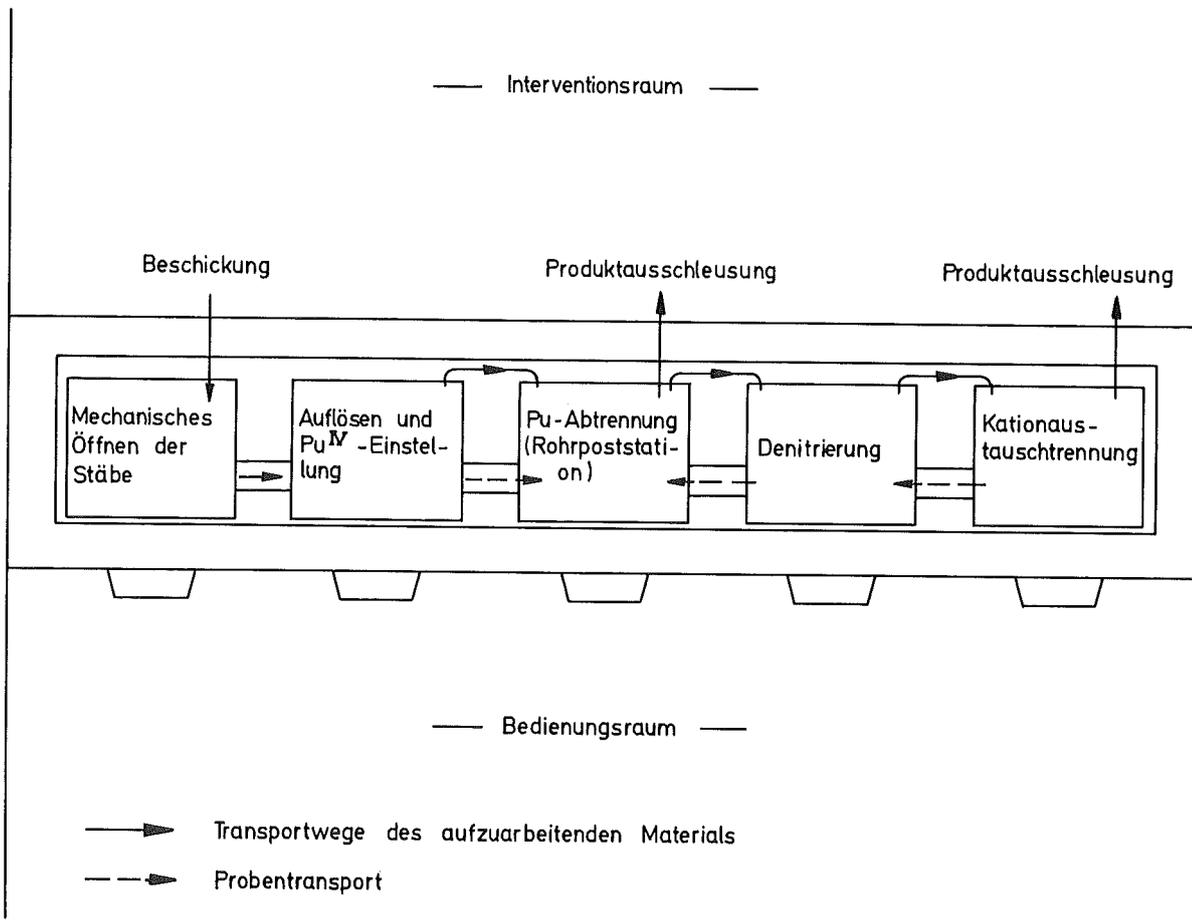


Abb. 3112.28: Räumliche Aufteilung der Verfahrensschritte in Box 1-5 des TPL-1

Der Auflöser (2.01), der Zwischenlagerbehälter (2.02), der Einstellbehälter (2.03) sowie diejenigen Leitungen, die aktive Prozeßlösungen führen, bestehen aus Edelstahl, während die Medienzuleitungen aus Polypropylen bestehen. Als Absperrorgane in den flüssigkeitsführenden Leitungen werden die in (59) beschriebenen Magnetventile mit Rubinkugeln als Dichtelement verwendet.

Die Probenahmeleitungen für die Prozeßbehälter (2.11 - 2.15) im Zellenfundament wurden über ein Mehrwege-Ventil (2HVO41) an die Probenahmestation (2.04) angeschlossen und mit einem Spülanschluß ausgerüstet.

Die Abgasreinigungsstrecke besteht aus einem Katalysator für die Zersetzung von Stickoxiden (2.014), einem Wärmeaustauscher (2.015) mit nachgeschaltetem Jodadsorptionsbett (2.016) und einer Kette von Absolutfiltern der Sonderklasse S (2.017). Der Probeaufbau und "Kalte" Funktionstest sind abgeschlossen. Die sich daraus ergebenden Ab-

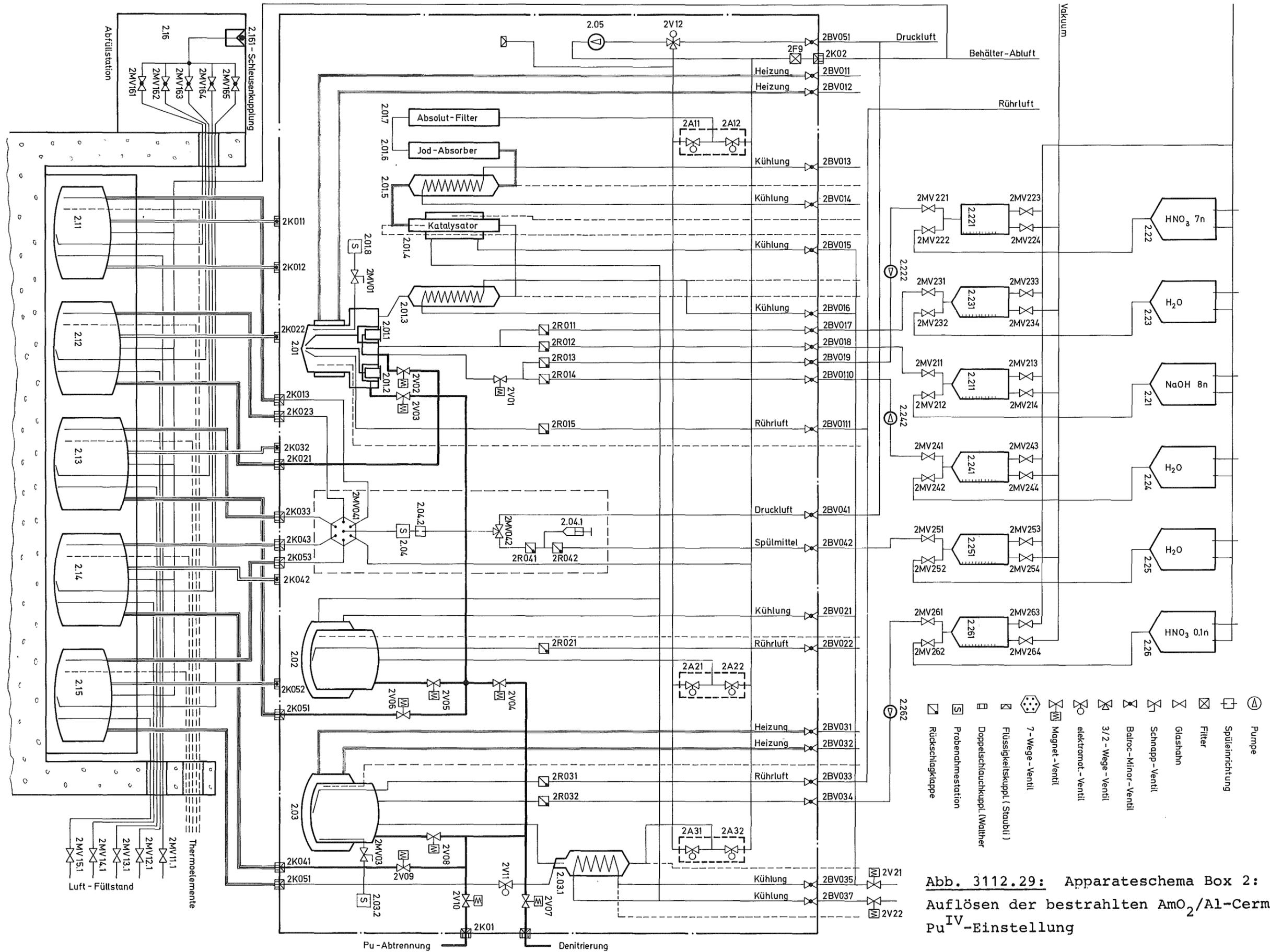
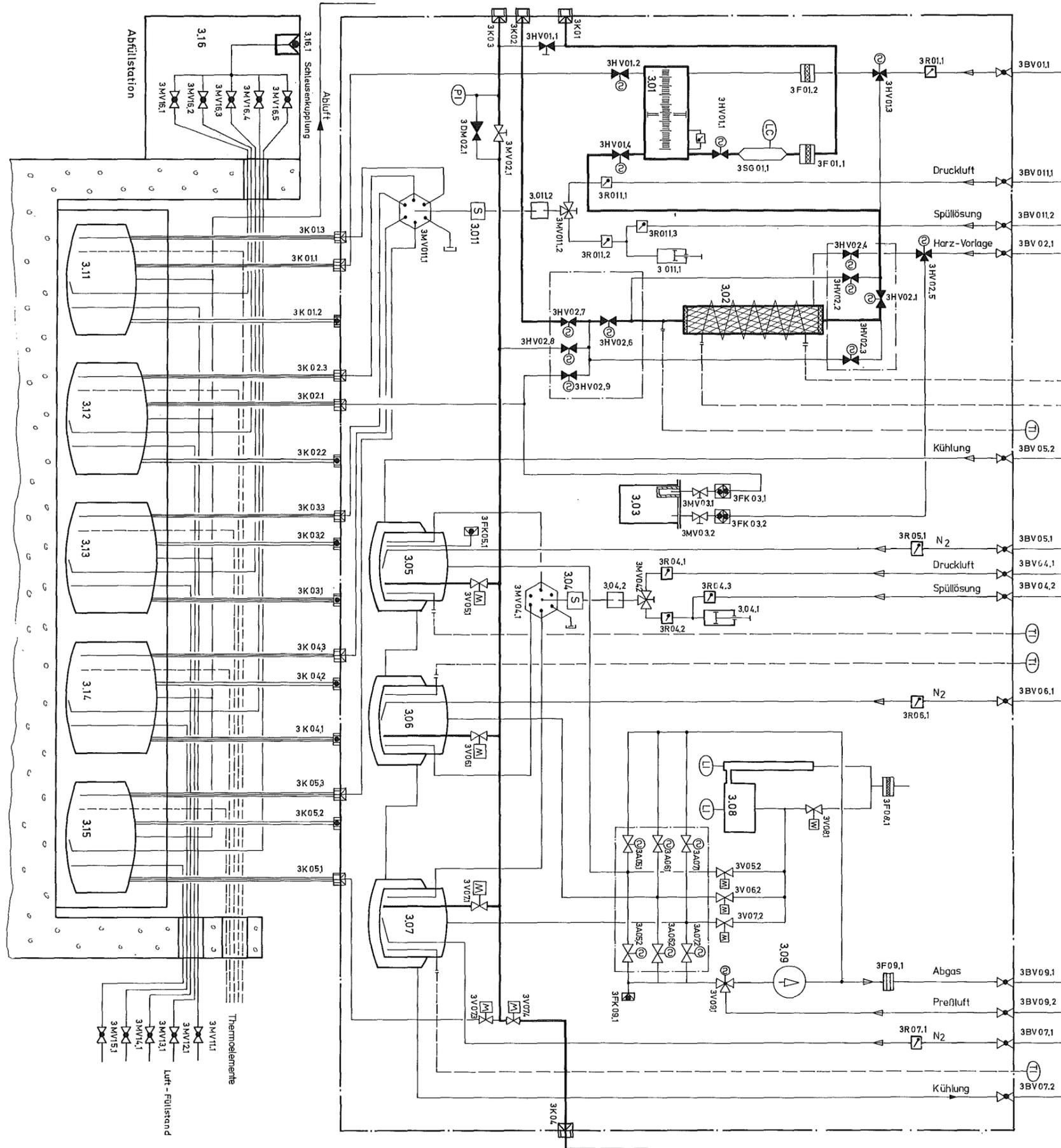


Abb. 3112.29: Apparateschema Box 2:
Auflösen der bestrahlten AmO₂/Al-Cermets,
Pu^{IV}-Einstellung



- Hochdruckventil
- Absperrentil
- Balroc - Minor - Ventil
- 3/2 - Wege - Ventil
- elektromot. - Ventil
- Magnet - Ventil
- 7 - Wege - Ventil
- Flüssigkeitskuppl. offen
- Doppelschlauchkuppl.
- Probenahmestation
- Rückschlagklappe
- Flüssigkeitskuppl. selbstschließend

Abb. 3112.30: Apparateschema Box 3:
Plutoniumabtrennung an Anionenaustauschern

änderungen im Aufbau und in der Leitungsverlegung werden augenblicklich ausgeführt.

3.42 Prozeßeinrichtung für Pu-Abtrennung

Abb. 3112.30 zeigt das Apparateschema für die Pu-Abtrennung. Die Einrichtung besteht aus Hochdruckeinspeisung (3.01), Hochdrucksäule (3.02), dem Harzwastebehälter (3.03) und 3 Prozeßbehälter (3.05 - 3.07) für die Fraktionierung des Eluats, wobei der Behälter 3.05 (Pu-Produktbehälter) mit einer Kopplungsmöglichkeit zum Entnehmen der Produktlösung versehen ist. Die Probenahmesysteme wurden ebenso wie in der Auflösebox gruppenweise für die Behälter 3.11 - 3.15 sowie 3.05 - 3.07 zusammengefaßt und mit Spüleinrichtungen ausgestattet.

Als zusätzliche Einrichtung ist eine Meßeinrichtung zur Erfassung der radiolysebedingten Gasentwicklung (3.08) während der Ionenaustauschtrennung eingebaut, die durch Messung des Druckaufbaus im abgeschlossenen Prozeßbehälter erfolgt. Die Funktionstests der einzelnen Komponenten sind abgeschlossen. Mit den Installationsarbeiten wurde begonnen.

3113 TECHNOLOGIE DER ENERGIEQUELLEN

3113.1 ²³⁸Pu-KAPSELN FÜR HERZSCHRITTMACHER

Ziel des Vorhabens ist die Entwicklung und die Erlangung einer behördlichen Zulassung von ²³⁸Pu-Kapseln als Energiequelle für Herzschrittmacher.

Das Programm für 1973 sah vor, Materialuntersuchungen und Tests an Kapseln sowie Neutronenemissionsmessungen und Dosismessungen an Phantomen durchzuführen.

1. Überprüfung von Dosisleistung, Kontamination und Dichtheit bei der Kapselfertigung

W. Robel, W. Jung

Bis Dezember 1973 wurden von der Fa. Alkem 49 HSM-Kapseln ausgeliefert; davon befinden sich z.Zt. 14 Kapseln auf Wunsch von Siemens-Erlangen noch bei der GfK.

Die γ -Dosisleistung der Kapseln lag bei ca. 2,2 $\mu\text{rem/h}$ in 50 cm Abstand, die Neutronendosisleistung zwischen 3 $\mu\text{rem/h}$, 50 cm und 6 $\mu\text{rem/h}$ 50 cm.

Tab. 3113.1 gibt einen Überblick, wie die bisher gelieferten Kapseln die folgenden Kriterien erfüllen:

- Neutronenquellstärke
 - $\leq 1100 \text{ n/sec (+)}$
 - $\leq 1200 \text{ n/sec (o)}$
- Kontamination
 - wischbar $\leq 2 \text{ ipm}$ bei einem Nulleffekt von 1 ipm
 - wischfest $\leq 100 \text{ ipm}$
- Lecktest: Leckrate $\leq 10^{-9} \text{ Torr Ltr. sec}^{-1}$.

2. Festigkeitsuntersuchungen

w. Jung, H. Kempe, E. Polifka, W. Robel

Die 1972 begonnenen Untersuchungen über die Belastbarkeit der HSM-Kapseln wurden weitergeführt.

"Static-stress" Tests

- a) Belastung der Kapsel zwischen Stahlplatten, Druckrichtung parallel zum Kapselbund: Die Kapsel hielt einer Belastung mit 1 t stand (Belastungszeit: 15 min), bei 3 t platzte sie im Schweißnahtbereich auf.
- b) Die Kapsel wurde an der Luft 30 Minuten auf 800°C erhitzt und mit kaltem Wasser abgeschreckt

Tab. 3113.1: Übersicht über die bisher gelieferten Kapseln

Kaps.Nr.	Eing.- Datum	Verbleib	N- Emission	Kontamination nach Anlieferung bei GfK		Lecktest
				wischbar	fest	
65	23.5.73	Siemens	-	+	-	+
67	"	"	-	+	+	+
68	"	"	o	+	+	+
69	"	"	o	+	-	+
70	"	"	-	+	+	+
72	"	"	o	+	-	+
73	"	"	o	+	+	+
74	"	"	o	+	+	+
75	28.5.73	"	-	+	+	+
76	28.5.73	"	-	+	+	+
82	10.7.73	"	+	+	-	+
83	"	"	+	+	+	+
84	"	"	+	-	-	+
85	"	"	+	+	-	+
86	"	"	+	+	-	+
87	"	"	+	+	+	+
88	"	"	+	+	-	+
89	"	"	+	-	-	+
97	"	"	+	-	+	+
98	"	"	+	+	+	+
99	"	"	+	-	-	+
00	"	"	+	-	-	+
01	"	"	+	-	+	+
81	25.7.73	"	-	+	-	+
91	"	"	o	+	-	+
92	"	"	o	+	-	+
93	"	"	o	+	-	+
94	"	"	o	+	-	+
95	"	"	o	+	-	+
102	"	"	o	+	-	+
107	24.9.73	GfK	-	+	-	+
108	"	GfK	-	-	-	+
109	"	GfK	-	-	-	+
110	"	Siem.	-	-	-	+
112	"	GfK	-	-	-	+
113	"	GfK	-	-	-	+
119	"	Siem.	-	-	-	+
120	"	Siem.	-	-	-	+
121	"	Siem.	-	-	-	+
123	"	GfK	-	-	-	+
124	"	GfK	-	-	-	+
125	"	GfK	-	-	-	+
126	"	GfK	-	-	-	+
127	"	GfK	-	-	-	+
128	"	GfK	-	-	-	+
129	"	Siem.	-	-	-	+
130	"	GfK	-	-	-	+
132	"	GfK	-	-	-	+
138	"	GfK	-	-	-	+

+ Kriterium erfüllt - Kriterium nicht erfüllt
o Kriterium wenig überschritten

1 t, 3 t, 5 t, 7 t, 10 t zwischen Stahlplatten belastet (Rockwellhärte der Stahlplatten ca. 55; Belastungszeit jeweils 15 min; Belastungsrichtung: senkrecht zum Bund). Nach jeder Lastaufgabe wurde die Kapsel durch Heliumlecktest auf Dichtigkeit überprüft, die Kapsel war auch nach Belastung mit 10 t dicht (vgl. Abb. 3113.1).

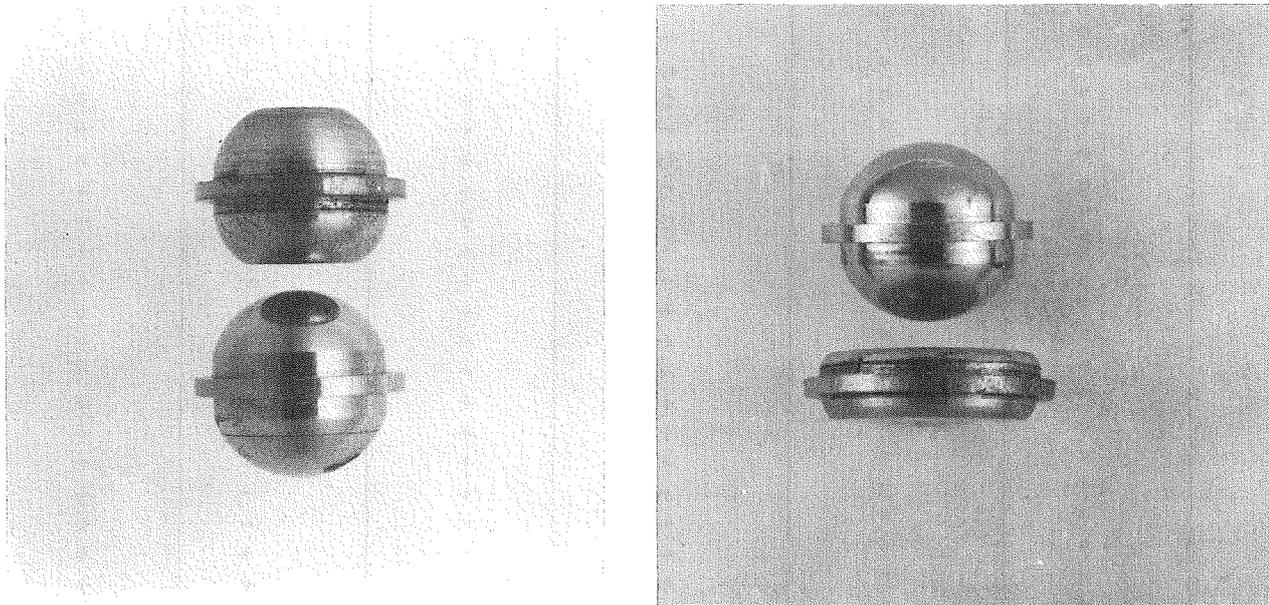


Abb. 3113.1: Herzschrittmacherkapsel nach dem "static-stress"-Test
links: nach Belastung mit 1 t (von NEA geforderter Wert)
rechts: nach weiterer Belastung mit 3t, 5t, 7t bis 10t
(Bild); die Kapsel hielt dieser extremen Belastung stand, ein Kapselleck konnte nicht nachgewiesen werden

Die bisher durchgeführten "static-stress"-Tests ergaben, daß die Kapseln den NEA-Anforderungen genügen (geforderte Prüflast: 1 t). Bei Belastung senkrecht bzw. unter etwa 45° zum Kapselrand wurden die NEA-Anforderungen deutlich übertroffen; etwas kritischer ist eine Belastung in Richtung des Kapselbunds.

"Impact"-Tests

Mit einem weiteren Test wurde das Ergebnis vorangegangener Versuche bestätigt. Die Kapseln blieben nach Beschleunigung auf max. 130 m/sec und Aufprall auf eine Stahlplatte dicht (NEA-Anforderung: 50 m/sec)

Temperatur-Test

Innendruck der Kapsel: 90 atü

Temperatur: 800°C, 30 min, anschließendes Abschrecken der Kapsel in kaltem Wasser

Ergebnis : NEA-Richtlinien erfüllt, kein Kapselleck nachweisbar.

(Versuchsdurchführung: Bundesanstalt für Materialprüfung BAM, Berlin)

Zeitstandfestigkeit

Die Standzeit der HSM-Kapseln wurde bei Temperaturen bis zu 1500°C und gleichzeitiger Belastung durch Innendruck gemessen. Für diese Versuche wurden modifizierte Kapseln eingesetzt, welche auf der der Schweißnaht abgewandten Kugelkalotte mit einem Kapillaransatz zur Aufgabe des Innendrucks versehen waren.

Die Kapseln wurden in einem beidseitig offenen Röhrenofen auf die vorgesehene Temperatur erhitzt. Die Temperatur wurde mit einem Thermoelement, welches direkt an der Kapsel anlag, gemessen und auf $\pm 2^\circ\text{C}$ konstantgehalten. Nach Erreichen der Solltemperatur wurde der gewünschte Innendruck aufgegeben und über ein Manometer kontrolliert. Der Zeitpunkt des Druckabfalls beim Leckwerden der Kapsel wurde durch eine mit dem Manometer gekoppelte Uhr registriert. Als Standzeit gilt die Spanne zwischen Druckaufgabe und beginnendem Druckabfall.

Ergebnisse

Die von den Kapseln gemessenen Standzeiten und die Bruchstellen sind in der Tabelle 3112.2 zusammengefaßt.

Tab. 3112.2: Ergebnisse der Zeitstandsversuche an HSM-Kapseln

Versuchsbedingungen Temp(°C) Druck(kp/cm ²)		Standzeit	Leckrate (Torr l/sec)	Bruchstelle
1500	88,5 ++	17 min	+	Riß in Schweißnaht- gegend
1500	20	24 h	+	"
1500	15	79 h	2,5 10 ⁻¹	Riß auf Kugelkalotte
1460	88,5	22 min	+	Riß in Schweißnaht- gegend
1460	20	31 h	2,5 10 ⁻²	2 Risse auf Kugel- kalotte
1300	80 ++	1 h	+	Riß in Schweißnaht- gegend
800	130	101 h	2,2 10 ⁻³	4 Löcher in Schweiß- nahtgegend

+ Leck zu groß, nicht mehr mit Lecktest meßbar.

++ Nach 15a zu erwartender Innendruck.

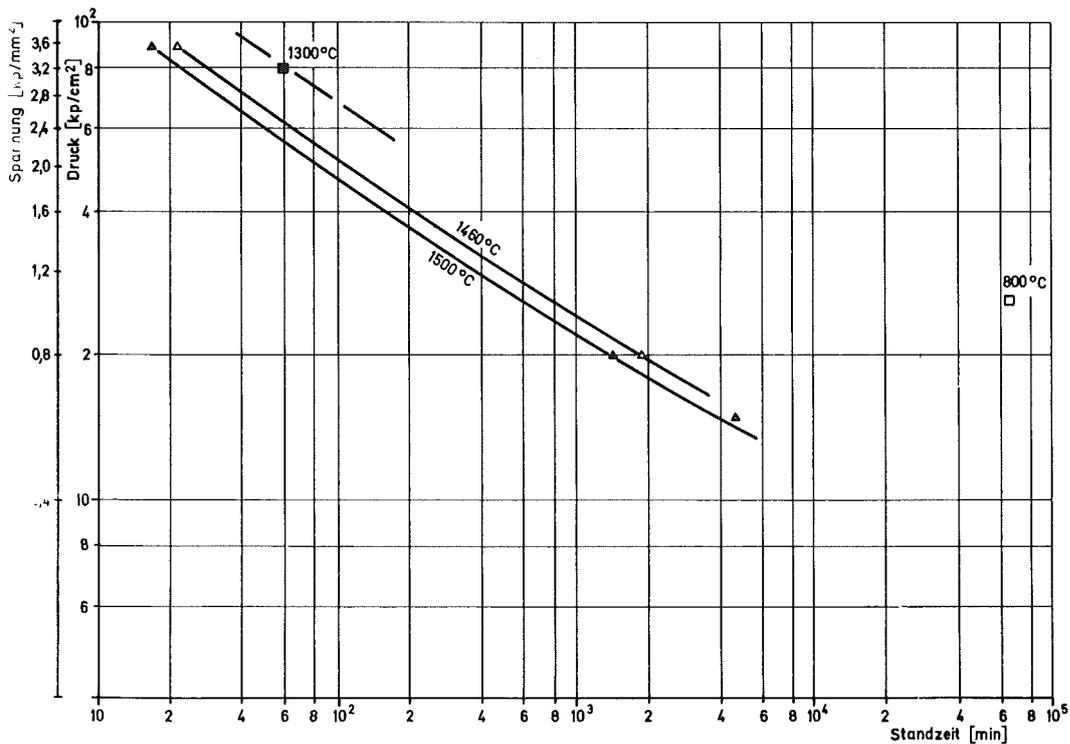


Abb. 3113.2: Zeitstandfestigkeit der Herzschrittmacherkapseln

Die Hauptspannungen wurden nach den folgenden Gleichungen berechnet:

$$\sigma_{t1,2} = \frac{P_i d_i L}{(d_a - d_i) S} = \frac{P_i d_i}{2S}$$

$$\sigma_r = P_i$$

P_i = Innendruck

S = Wandstärke

d_i = Innendurchmesser

d_a = Außendurchmesser

Von Mises benutzte alle drei Hauptspannungen zur Formulierung einer Vergleichsspannung

$$\sigma_v = \sqrt{\frac{1}{2} \left[(\sigma_{t1} - \sigma_{t2})^2 + (\sigma_{t1} - \sigma_r)^2 + (\sigma_r - \sigma_{t2})^2 \right]^{1/2}}$$

die neben dem Belastungsdruck in dem Diagramm aufgetragen wurde.

In der Mehrzahl der Fälle platzten die Kapseln im Schweißnahtbereich auf; (s. Abb. 3113.3 u. Abb. 3113.4) bei einigen Versuchen traten Mikrorisse auf der Kugelkalotte auf, die auf eine Gefügebrauchung durch Rekristallisation zurückzuführen sind. Bei einer Betriebszeit der Kapsel von 15 a ist bei 1300°C ein Innendruck von etwa 80 kp/cm² zu erwarten; unter diesen Bedingungen wurde eine Standzeit von 60 Minuten gemessen. Die NEA-Richtlinien für den "Cremation-Test" wurden Ende 1973 geändert, die geforderte Standzeit bei 1300°C wurde von 30 auf 90 Minuten erhöht. Damit erfüllen die Kapseln die NEA-Anforderungen nicht mehr für 15-jährige Betriebszeiten.

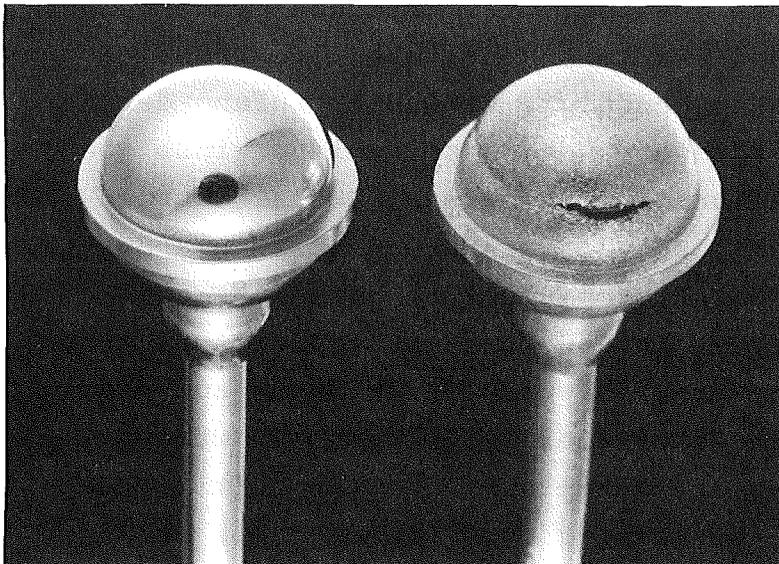


Abb. 3113.3:

Kapillarkapseln nach den Standzeitversuchen (links: Originalkapsel; rechts: Riß im Schweißnahtbereich).

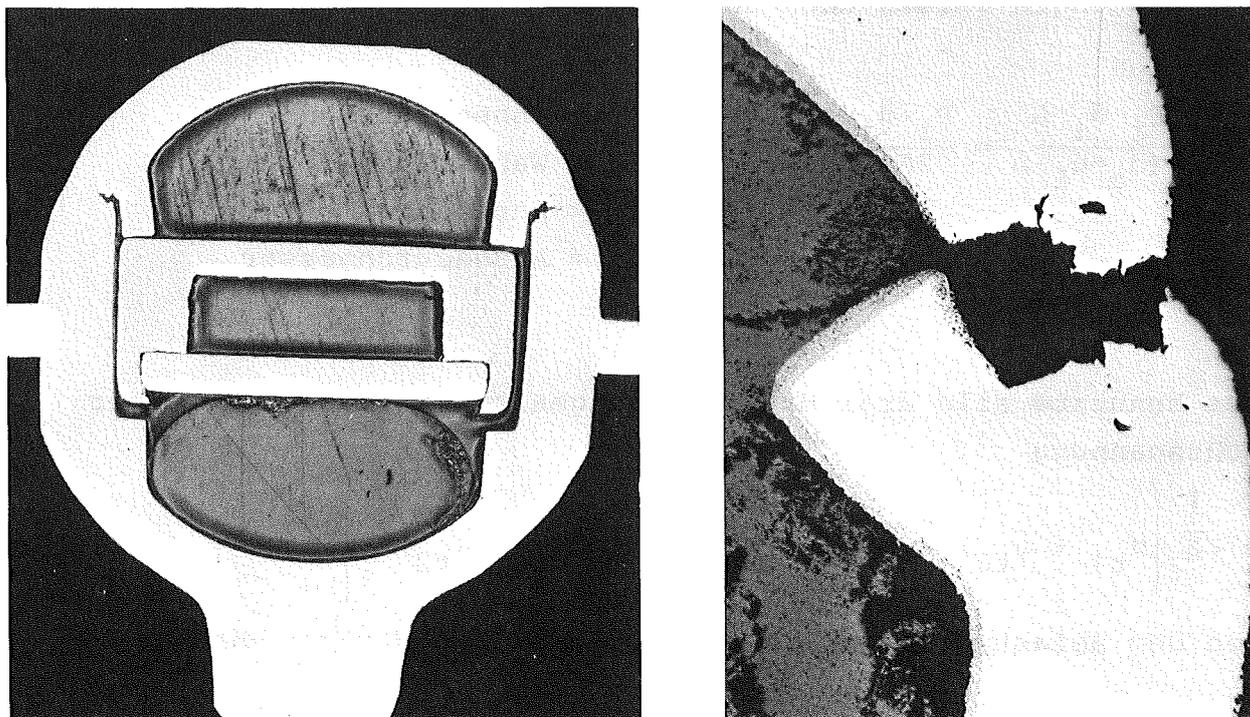


Abb. 3113.4: Schliffbilder von HSM-Kapseln nach dem Zeitstandsversuch. Kapselleck im Schweißnahtbereich

3. Überprüfung des ^{238}Pu -Gehaltes von Herzschrittmacherkapseln

K. Böhnel, E. Gantner, M. Mostafa, W. Robel

Zur Berechnung des Wirkungsgrades des thermoelektrischen Wandler werden von der Fa. Siemens möglichst exakte Angaben über die Wärmeleistung bzw. den Pu-Gehalt der HSM-Kapseln benötigt. Eine Überprüfung der Wärmeleistung durch Kalorimetrie erbrachte wegen des Fehlens eines geeigneten Kalorimeters keine befriedigenden Ergebnisse. Deshalb wurden die Eignung anderer Verfahren zur Überprüfung des Pu-Gehalts wie γ -Spektrometrie (über die 768 keV-Linie des Plutoniums-238) bzw. Neutronenkoinzidenzmessungen untersucht. Bei beiden Verfahren handelt es sich um Relativmessungen, der Plutoniumgehalt wurde durch Bezug auf eine Standardkapsel ermittelt; der Pu-Gehalt der Referenzkapsel wurde kalorimetrisch mit hoher Genauigkeit durch die PTB überprüft (Pu-Gehalt lt. Einwaage und kalorimetrisch bestimmter Wert stimmten bis auf 0,7 ‰ überein). Die vergleichenden Messungen ergaben die in Tab. 3113.3 aufgeführten Werte.

Tab. 3113.3: Bestimmung des ^{238}Pu -Gehaltes von HSM-Kapseln;
Vergleich verschiedener Methoden

Kapsel Nr.	Pu-Gehalt lt. Einwaage (mg)	Pu-Gehalt gefunden (in % der Einwaage)		
		Kalorimetrie (PTB)	γ -Spektrum (IRCh)	n,n-Koinzidenz (INR)
81	180,23	- 11,4%	- 11,2%	- 12,3%
91	188,3	- 1,5%	- 4,6%	- 3,3%
92	185,7	- 7,1%	- 9,9%	- 10,1%
93	187,8	- 3,5%	- 1,9%	- 6,3%
94	183,3	- 0,7%	+ 0,5%	- 2,3%
95	188,0	- 3,3%	- 2%	- 6,4%
102	182,1	+ 1,3%	+ 2,2%	- 3,3%

Bei den Kapseln 81 - 102 traten deutliche Diskrepanzen (besonders bei den Kapseln 81 und 92) zwischen dem angegebenen und dem gemessenen Plutoniumgehalt auf. Da alle 3 Methoden ähnliche Abweichungen vom Einwaagewert ergaben, scheinen hierbei Wägefehler vorzuliegen. Bei den Kapseln der nächsten Lieferung der Fa. Alkem ergab sich eine deutlich bessere Übereinstimmung zwischen Einwaage und γ -spektroskopisch ermitteltem Wert- Pu-Gehalt. Durch ergänzende kalorimetrische Messungen an Kapseln der letzten Lieferung soll geklärt werden, ob sich die angeführten Verfahren zur routinemäßigen Überprüfung des Pu-Gehalts mit ausreichender Genauigkeit eignen.

4. Neutronenemissionsmessungen an Herzschrittmacherkapseln

K. Böhnel, H. Werle

Für zwei Herzschrittmacherkapseln (Nr. 21 und 22) wurden Messungen der Neutronenstrahlung durchgeführt. Dabei wurden die Quellstärke, das Spektrum und der von der Spontanspaltung herrührende Anteil der Neutronen bestimmt.

Die Herstellerangaben (63) für beide Kapseln sind gleich. Sie sind in der Tab. 3113.4 zusammengefaßt.

Tab. 3113.4: Pu-Zusammensetzung

Masse ^{238}Pu	0,1789 g
Pu-Zusammensetzung	
^{236}Pu	0,26 ppm
^{238}Pu	90,14 %
^{239}Pu	9,21 %
^{240}Pu	0,61%
^{241}Pu	0,03 %
^{242}Pu	0,01 %
Verunreinigungen	
Cl	1940 ppm
F	6 ppm
B	1 ppm

Neben den fertigen Herzschrittmacherkapseln wurde auch eine Probe von 2,4 g ungereinigtem PuO_2 mit 80,65 % ^{238}Pu vermessen.

Neutronenemission

Die Neutronenemission wurde auf zwei verschiedene Arten gemessen, wobei die eine Methode auch das Neutronenspektrum liefert und die andere auch zur Bestimmung des aus der Spontanspaltung stammenden Anteils der Neutronen verwendet wird.

Die erste Art verwendet ein Protonenrückstoßproportionalzählrohr (Anordnung siehe Abb. 3113.4). Es hat 9 cm Durchmesser, 80 cm aktive Länge und ist mit 3 at Methan gefüllt. Sein Meßbereich liegt

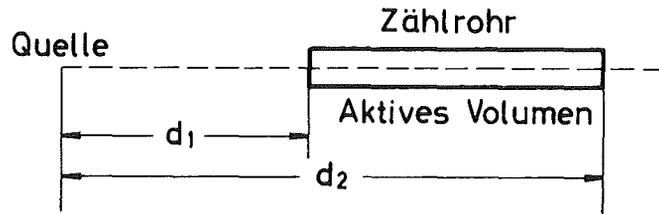


Abb. 3113.4: Geometrie für Quelle und Rückstoßprotonen-Zählrohr

zwischen 1 und 5 MeV. Gemessen wird der über das Zählrohrvolumen gemittelte Fluß N_E (pro Energieintervall) (Neutronen/(cm² s MeV)). Daraus berechnet sich mit den in Abb. 3113.4 skizzierten Abständen die Quellstärke

$$N = 4\pi \cdot d_1 \cdot d_2 \cdot \int N_E(E) dE \quad 4.1$$

Dabei wurde der nicht gemessene Anteil des Spektrums, wie in Abb.3113.5 angedeutet, extrapoliert. Der Gesamtfehler der Quellstärke liegt bei 10 % für die ungereinigte Probe und bei etwa 20 % für die fertigen Kapseln. Auf jeweils 1 g ²³⁸Pu bezogen, ergeben sich die Werte

$$\begin{aligned} N_{\text{Kapsel-Pu}} &= 9,2 \cdot 10^3 \text{ n/(sec g)} \\ N_{\text{ungereinigt}} &= 2,03 \cdot 10^5 \text{ n/(sec g)} \end{aligned}$$

Bei der zweiten Methode wird ein Detektor eingesetzt, der ¹⁸He-Zählrohre in einem Moderatorblock aus Polyäthylen (45cmx45cmx120cm) enthält. Er wurde mit einer ²⁵²Cf-Quelle geeicht, deren Spontanspaltrate in einer kleinen Parallelplattenspaltkammer bestimmt wurde. Die Spektrumsunterschiede zwischen Spaltneutronen und der untersuchten Probe sollten auf Grund durchgeführter Rechnungen die Empfindlichkeit des Detektors um weniger als 10 % beeinflussen. Unter dieser Annahme wurde die Quellstärke pro Gramm ²³⁸Pu zu

$$N_{\text{Kapsel-Pu}} = (7,25 \pm 1,0 \text{ } -0,4) \cdot 10^3 \text{ n/(sec g)}$$

bestimmt. Die Quellstärken der beiden Kapseln stimmten innerhalb 2 % überein, was etwa der Meßgenauigkeit entspricht. Als Mittelwert der beiden Meßmethoden ergibt sich

$$N_{\text{Kapsel-Pu}} = 8220 \pm 15\% \text{ n/(sec g/(sec g } ^{238}\text{Pu))}$$

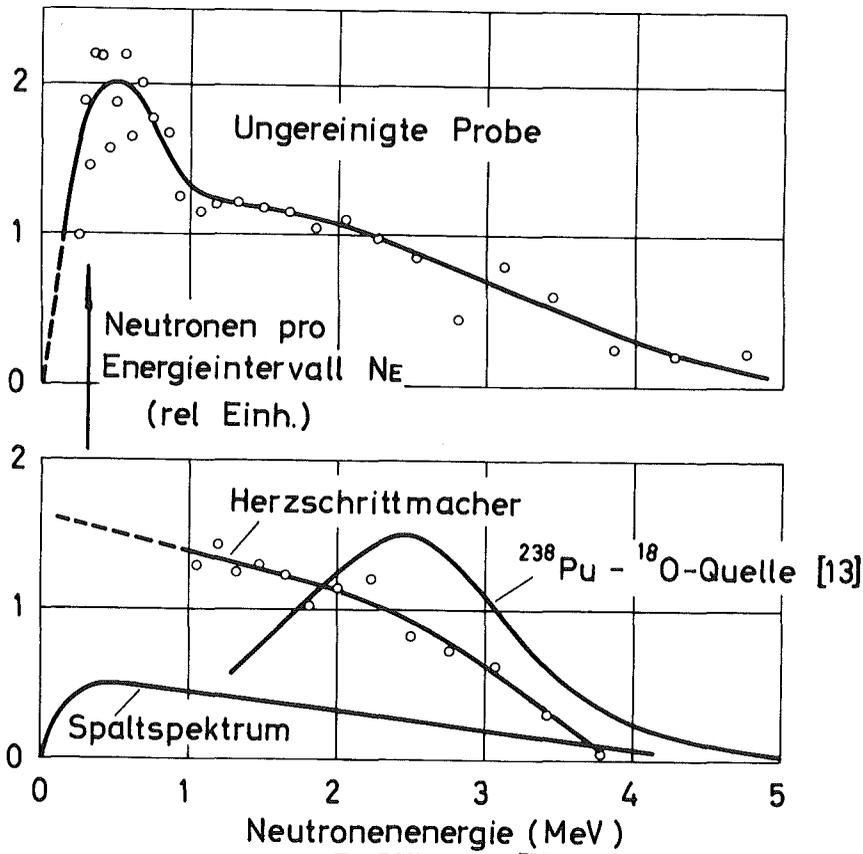


Abb. 3113.5:

Neutronenspektren für ungereinigtes Material und fertige Herzschrittmarker

Neutronenspektrum

Die verwendete Meßmethode ist in (64) geschildert. Das so mit dem Protonenrückstoßzählrohr in der in Abb. 3113.4 dargestellten Anordnung gemessene Spektrum zeigt die Abb. 3113.5 sowohl für die ungereinigte Probe wie für die fertigen Kapseln. Die Form des hier gemessenen Spektrums (im Vergleich zu $^{238}\text{Pu}/^{18}\text{O}$ -Spektren, Abb. 3113.5, (65)) spricht dafür, daß ein merklicher Teil der Neutronen aus Reaktionen an Verunreinigungen stammt, die ein niederenergetisches Neutronenspektrum liefern.

Spaltneutronenanteil

Die Bestimmung des Anteils der Spaltneutronen erfolgt in einer Autokorrelationsmessung mit einer in (66) beschriebenen Koinzidenzeinheit. Die der Spaltrate S zugeordnete Nettokoinzidenzrate C ergibt sich zu

$$C = I \cdot \frac{\overline{v_p(v_p - 1)}}{2} \cdot S$$

wobei I eine Instrumentenkonstante ist, die durch eine Eichung mit

der schon erwähnten ^{252}Cf -Quelle bestimmt wird. Zur Berechnung der Zahl der Spontanspaltungen in ^{238}Pu , deren Neutronenausbeute und der Masse ^{238}Pu werden die im folgenden aufgeführten Nuklearkonstanten benötigt, die aus (67,68,69,70) und anhand dort aufgeführter Beziehungen berechnet wurden.

	$\bar{\nu}$	$\bar{\nu}_p$	$\frac{\nu_p(\nu_p-1)}{2}$	Halbwertszeit für Spontanspaltung
^{238}Pu	$\approx \bar{\nu}_p$	2,21	$0,40 \bar{\nu}_p^2$	$1,58 \cdot 10^{18} \text{ s}$
^{252}Cf	3,765	3,756	$0,42 \bar{\nu}_p^2$	

Daraus berechnet sich die spezifische Spaltrate für ^{238}Pu zu $s = 1112 \text{ g}^{-1} \text{ sec}^{-1}$ und die spezifische Neutronenemission zu $n = 2460 \text{ g}^{-1} \text{ sec}^{-1}$.

Das gemessene Verhältnis der Koinzidenzraten für Kapseln und Eichquelle liefert für eine Kapsel die Ergebnisse

$$\begin{aligned}
 S(\text{Pu}) &= 244 \text{ Spaltungen/sec} \\
 N_{\text{Sp}}(\text{Pu}) &= 538 \text{ Spontanspaltneutronen/sec} \\
 m(\text{pu}) &= 0,219 \text{ g } ^{238}\text{Pu}
 \end{aligned}$$

In die Fehlerbetrachtung gehen 3 % Meßungenauigkeit, 10 % Unsicherheit aus der Genauigkeit der $\bar{\nu}$ -Werte ein, für die Massenbestimmung zusätzlich der Fehler in der Halbwertszeit für Spontanspaltung. Damit kann jedoch die Abweichung gegenüber den Herstellerangaben von 0,179 g nicht erklärt werden.

Mit der im gleichen Experiment gefundenen Gesamtemission von 1297 n/sec ergibt sich, daß nur rund 40 % der Neutronen aus der Spontanspaltung stammen.

Diskussion

Die ^{238}Pu -Spontanspaltung liefert etwa $2460 \text{ n}/(\text{sec g})$, die bekannten Verunreinigungen nach Tabelle 1 ergeben etwa $600 \text{ n}/(\text{sec g})$. Die gegen-

über dem gemessenen Mittelwert verbleibenden rund 5200 n/(sec g) sind (α, n)-Reaktionen an den höheren Sauerstoffisotopen und Verunreinigungen zuzuordnen, wobei das Spektrum darauf hinweist, daß letztere einen erheblichen Anteil haben.

5. In-Phantom Dosimetrie mit einer ^{238}Pu -Herzschrittmacherkapsel
E. Piesch, B. Burgkhardt

Die Verwendung von ^{238}Pu -Quellen als Energieerzeuger in Herzschrittmachern macht es aus Strahlenschutzgründen erforderlich, die durch Neutronen und γ -Strahlung verursachte Personenbelastung abzuschätzen. Zu diesem Zweck wurden an einem Alderson-Menschphantom Bestrahlungen mit doppelwandig umhüllten 200 mg ^{238}Pu -Quellen (HSM-Kapseln) durchgeführt, die zum Einbau als Energieversorger in Herzschrittmacher vorgesehen sind. Wegen der geringen Neutronenquellstärke wurden zusätzliche Bestrahlungen mit einer 1 mg ^{252}Cf -Quelle durchgeführt, deren Quellstärke um den Faktor 10^6 höher ist im Vergleich zur ^{238}Pu -Kapsel für Herzschrittmacher. Ausgehend von den gemessenen Tiefendosisverteilungen im Phantom wurde die Äquivalentdosis für verschiedene Gewebetiefen sowie für besonders interessante Orte im Phantom ermittelt.

Meßmethode

Zur Ermittlung der Tiefendosisverteilung in einem Alderson-Menschphantom wurden folgende Detektoren eingesetzt (s. auch Tab. 3113.5)

- ^{237}Np + Makrofol zum Nachweis schneller Neutronen
> 0,75 MeV
- ^{232}Th + Makrofol zum Nachweis schneller Neutronen
> 1,2 MeV
- ^{198}Au + ^{198}Au in Cd zum Nachweis thermischer und mittelschneller Neutronen
- ^6LiF + ^7LiF -Thermolumineszenzdosimeter zur Messung der Äquivalentdosis von γ -Strahlung (TLD 700) und thermischen Neutronen (Meßwertdifferenz von TLD 600 und TLD 700).

Die Messungen erfolgten in einem Alderson-Menschphantom entlang der vertikalen Körperachse vom Scheitel bis zum Gonadenbereich sowie bevorzugt entlang einer horizontalen Körperachse in der vorgesehenen Höhe des Herzschrittmachers (Scheibe 15-16) und in Höhe der Gonaden (Scheibe 30-31). Die Neutronenquellen wurden seitlich unter dem Armansatz (Scheibe 15) direkt an der Phantomoberfläche befestigt. Die LiF-Dosimeter wurden in den vorgesehenen Bohrungen des Alderson-Menschphantoms exponiert, Aktivierungsdetektoren und Spaltfragmentdetektoren mußten wegen ihrer Größe zwischen den Scheiben des Phantoms eingelegt werden.

Tab. 3113.5: Nachweisempfindlichkeit der Neutronendetektoren

Detektor	Energie	Anzeige für 10^{10} n/cm^2
Gold (50 μm Folie, 10 mm \varnothing)	n_{th}	$3,9 \cdot 10^4 \frac{\text{Zerf.}}{\text{min}}$
	n_m	$9,7 \cdot 10^3 \frac{\text{Zerf.}}{\text{min}}$
^{237}Np (40 $\mu\text{g/cm}^2$ auf Stahl)	$n > 0,75 \text{ MeV}$	$1,4 \cdot 10^3 \frac{\text{Spuren}}{\text{cm}^2}$
^{232}Th (0,05 mm Folie)	$n > 1,2 \text{ MeV}$	$1,3 \cdot 10^4 \frac{\text{Spuren}}{\text{cm}^2}$
^6LiF	n_{th}	1000 R
^7LiF	n_{th}	1,3 R

Für die ^{238}Pu -Kapsel konnte im Menschphantom die γ -Dosisleistung sowie die Flußdichteverteilung thermischer Neutronen mit LiF-Dosimetern ermittelt werden. Wegen des zu geringen Neutronenquellflusses wurden zusätzliche Neutronenmessungen mit einer ^{252}Cf -Quelle durchgeführt. Sowohl ^{252}Cf als auch gereinigtes ^{238}Pu emittieren Spaltneutronen.

Damit lassen sich die ^{252}Cf -Meßergebnisse auf die ^{238}Pu -Kapsel übertragen.

Für die Phantommessungen wurde eine ^{238}Pu -Kapsel verwendet, die wegen einer geringen ^{236}Pu -Verunreinigung in der γ -Dosisleistung als auch in der Neutronenquellstärke um einen Faktor 5,6 bzw. 14,3 höher lag, als die für den Einbau in Herzschrittmachern vorgesehenen Pu-Kapseln. Bei der Abschätzung der Körperdosis für einen Herzschrittmacher wurde daher eine nominelle ^{238}Pu -Kapsel mit einer Neutronenquellstärke von $1,4 \times 10^3$ n/sec (tatsächliche Quellstärke bis 2×10^3 n/sec) bei einem ^{236}Pu -Anteil von etwa 0,26 ppm zugrundegelegt. Die γ -Dosisleistung aller Pu-Kapseln wurde über eine Freiluftmessung mit LiF-Dosimetern bzw. über eine Relativmessung mit einem Zählrohr ermittelt.

γ -Dosisleistung

Die Meßergebnisse der TLD 700 Dosimeter, die nach Bestrahlung des Phantoms mit der ^{238}Pu -Kapsel bzw. mit der ^{252}Cf -Quelle erhalten wurden, sind in Abb. 3113.5 und 3113.6 für die Positionen entlang der vertikalen und horizontalen Körperachse wiedergegeben. Beide Quellen zeigen annähernd dieselbe Tiefendosisverteilung. Die unterschiedlichen Meßergebnisse im Bereich des Kopfes sind wahrscheinlich auf Unterschiede in der Bestrahlungsgeometrie (Größe der Quellen) zurückzuführen. Ein Einfluß eines unterschiedlichen γ -Spektrums kann auch in größeren Gewebetiefen nicht festgestellt werden.

Alle γ -Dosismeßergebnisse der ^{252}Cf -Bestrahlung sind nochmals in Abb. 3113.7 in Abhängigkeit vom Abstand zur Quelle wiedergegeben. Die Streuung der Meßwerte sind vor allem auf Inhomogenitäten im Körper z.B. Lunge, Knochen zurückzuführen. Die Messungen an der Phantomboberfläche entsprechen mit Ausnahme der Meßergebnisse am Scheitel den Meßwerten im Phantom.

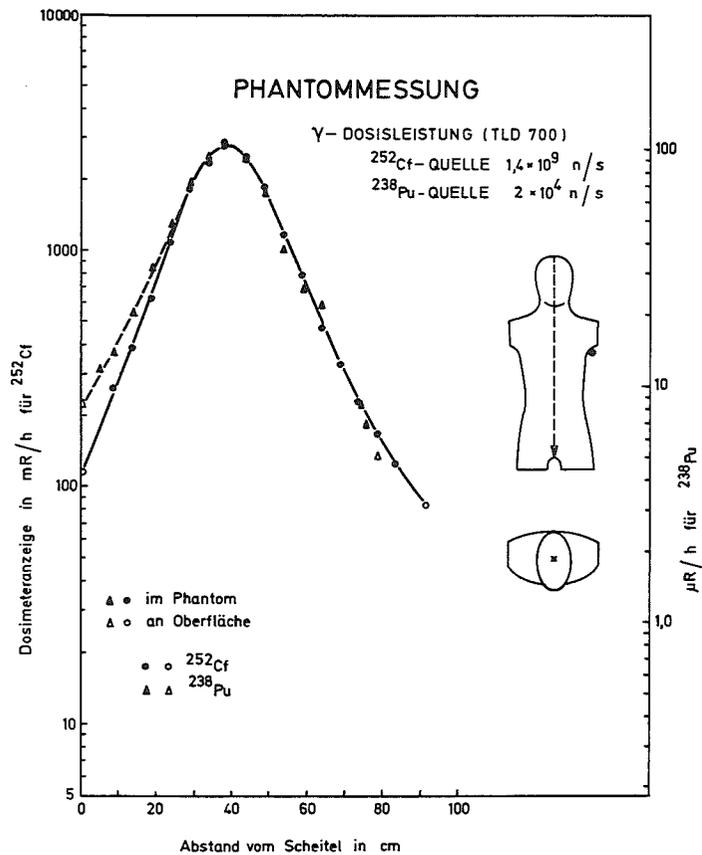


Abb. 3113.5: Vertikalverteilung der γ -Dosisleistung einer ^{252}Cf bzw. ^{238}Pu -Quelle in einem Alderson-Menschenphantom gemessen mit LiF-Dosimetern

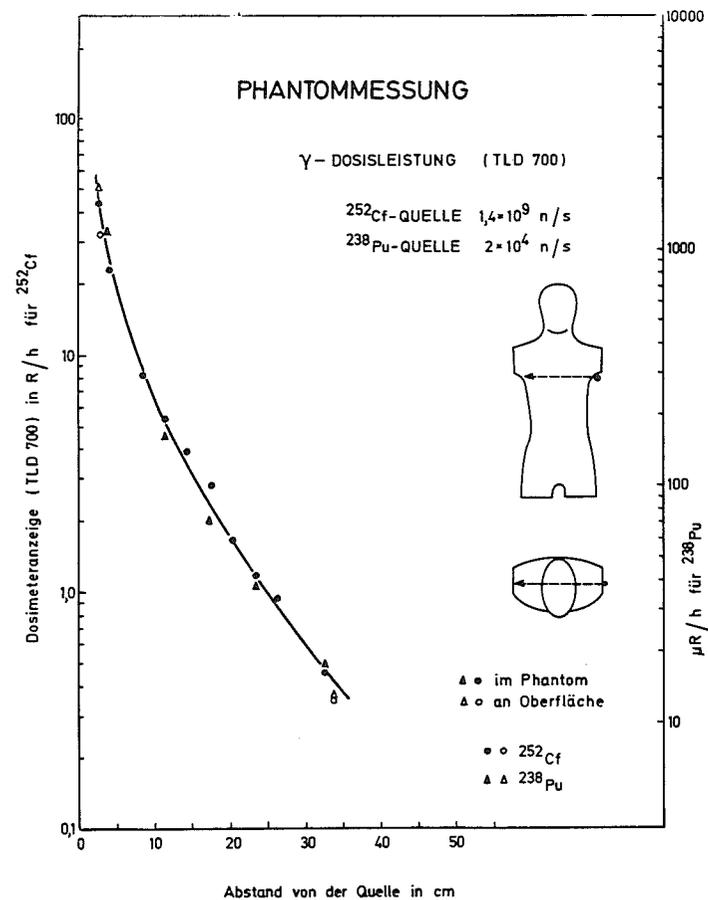


Abb. 3113.6: Horizontalverteilung der γ -Dosisleistung gemessen mit LiF-Dosimetern

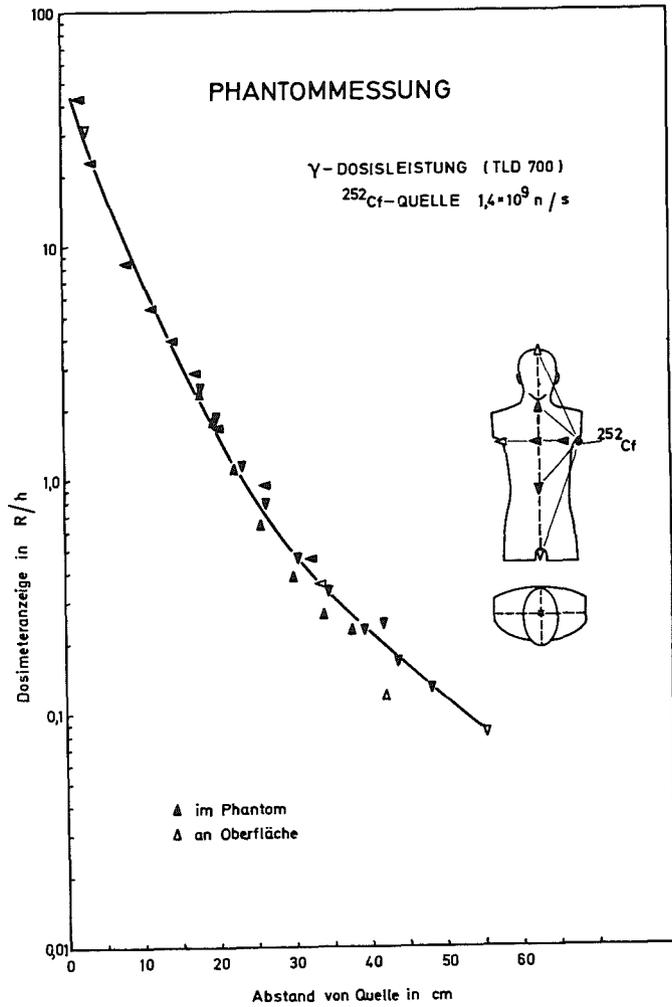


Abb. 3113.7: γ -Dosisleistung einer ^{252}Cf -Quelle in Abhängigkeit vom Abstand zur Quelle

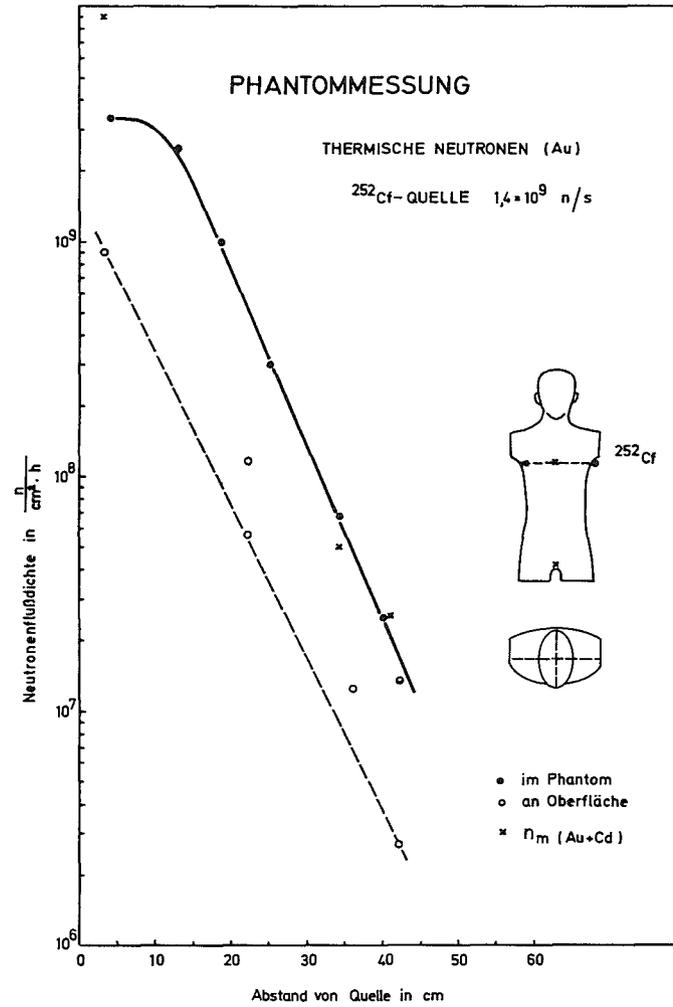


Abb. 3113.8: Flußdichte thermischer Neutronen gemessen mit Goldfolien, ^{252}Cf -Quelle

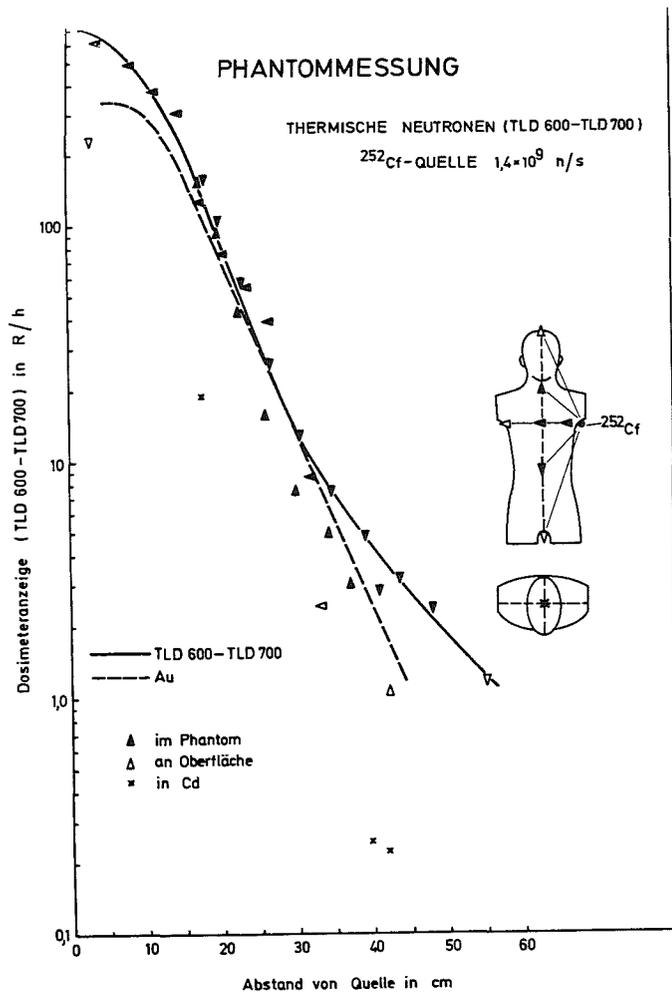


Abb. 3113.9: Flußdichteverteilung thermischer Neutronen gemessen mit LiF-Dosimeterpaaren

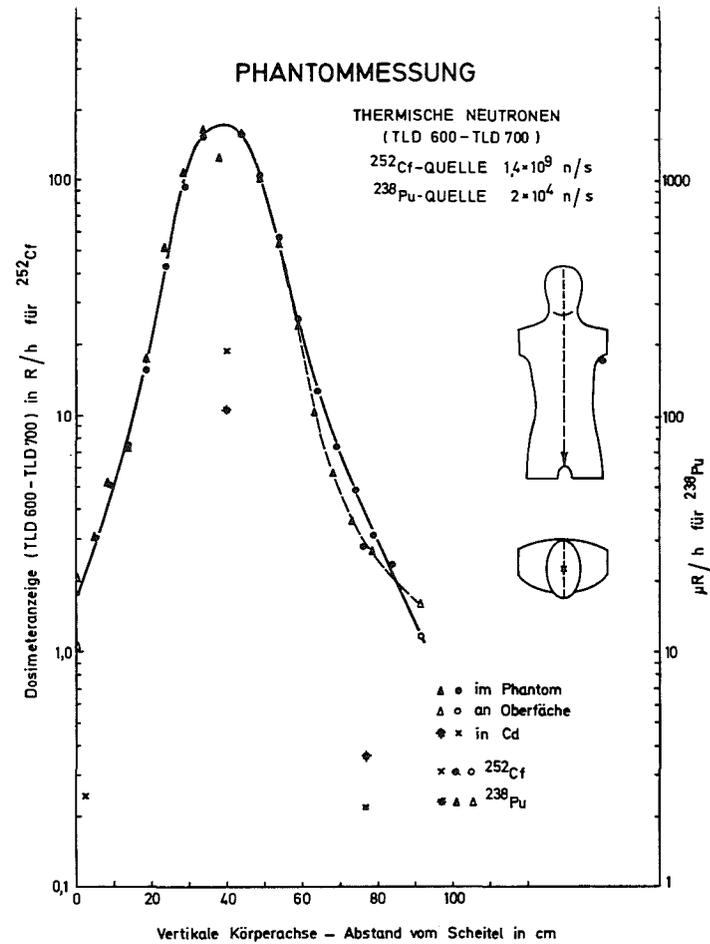


Abb. 3113.10: Vertikale Flußdichteverteilung thermischer Neutronen gemessen mit LiF-Dosimeterpaaren

Thermische Neutronen

Die mit Au und Au in Cd durchgeführten Sondenmessungen in Quellenhöhe und Gonadenhöhe ergaben die in Abb. 3113.8 wiedergegebene Neutronenflußdichteverteilung. Wegen des Aufbaueffektes in Gewebetiefen bis zu 10 cm ist die Neutronenflußdichte im Gewebe um eine Größenordnung größer als an der Oberfläche. Die Neutronenflußdichte mittelschneller Neutronen (Au in Cd) ist in geringen Gewebetiefen höher als der entsprechende Wert für thermische Neutronen.

Ein Vergleich der mit Au-Sonden und mit LiF-Dosimetern erhaltenen Meßwerte für thermische Neutronen zeigt Abb. 3113.9. In Quellabständen von 14-30 cm erhält man eine gute Übereinstimmung für beide Meßmethoden. Meßwertabweichungen sind auf den Meßwertanteil mittelschneller Neutronen zurückzuführen. Dies ist wegen der geringen Gewebeschicht zwischen Quelle und Meßort insbesondere in Quellennähe aber auch in größeren Abständen (Gonadenbereich) festzustellen.

Abb. 3113.10 zeigt einen Vergleich der mit LiF Dosimetern ermittelten Neutronenflußdichteverteilung entlang der vertikalen Körperachse für die ^{238}Pu -Kapsel und die ^{252}Cf -Quelle. Geringe Abweichungen in größeren Abständen von der Quelle müssen auch hier auf eine unterschiedliche Bestrahlungsgeometrie (unterschiedliche Kapselgröße) zurückgeführt werden. Ausgehend von der Neutronenquellstärke der ^{252}Cf -Quelle von $1,4 \times 10^9$ n/sec und den Meßergebnissen der LiF-Messung errechnet sich die Quellstärke für die ^{238}Pu -Kapselung zu $1,4 \times 10^4$ n/sec. Eine Direktmessung des Quellflusses der Pu-Kapsel ergab 2×10^4 n/sec. Diese Abweichung ist vor allem auf Unterschiede im Neutronenspektrum zurückzuführen.

Schnelle Neutronen

Abb. 3113.11 zeigt die mit den Spaltfragmentdetektoren im Phantom gemessene Neutronenflußdichte in Abhängigkeit vom Abstand zur ^{252}Cf -Quelle. Wegen der unterschiedlichen Energieschwelle beider Detektoren ist der ^{232}Th -Meßwert etwa um den Faktor 0,5 kleiner. Die Meßwerte an der Oberfläche entsprechen in erster Näherung den Meßwerten der

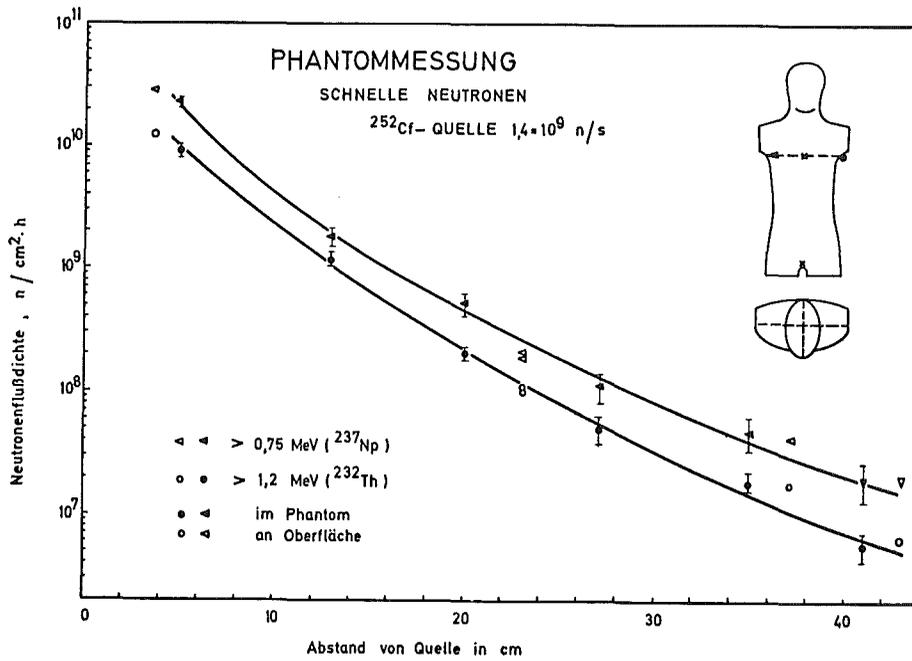


Abb. 3113.11: Flußdichte schneller Neutronen gemessen mit ^{237}Np und ^{232}Th

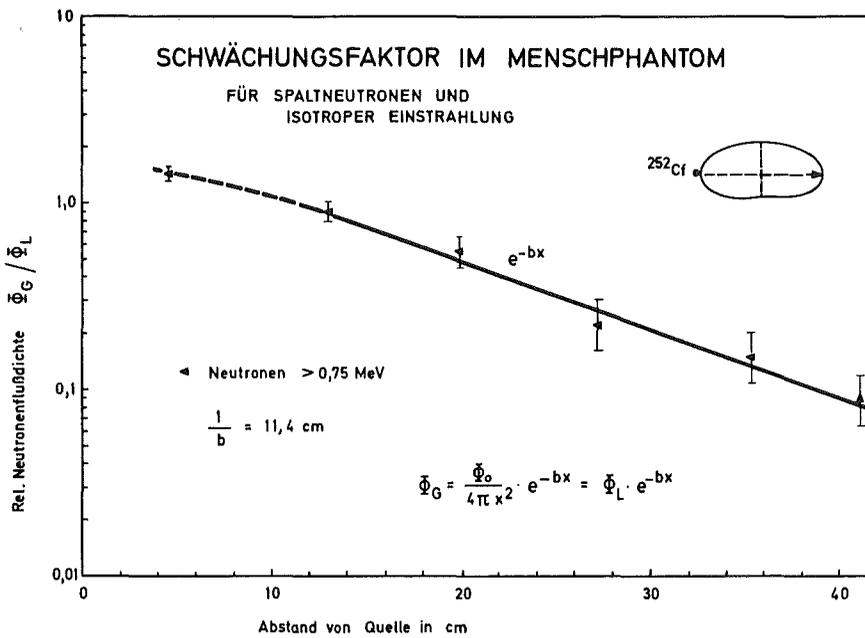


Abb. 3113.12: Neutronenfluß-Schwächungsfaktor in einem Alderson-Menschphantom für Spaltneutronen und isotroper Einstrahlung gemessen mit ^{237}Np

Tiefendosisverteilung. Die Meßpunkte wurden in der vorliegenden Abbildung mit den entsprechenden Meßfehlern (Standardabweichung von 2σ) eingezeichnet, die aus der Spurenzahl der mikroskopischen Auszählung bzw. der Auswertung im Spark-Counter bestimmt wurde.

Schwächungsfaktor für Spaltneutronen

Aus dem Verhältnis der Neutronenflußdichte im Gewebe $\Phi_G(x)$ zur Neutronenflußdichte in Luft $\Phi_L(x)$ in einem Abstand x von der Neutronenquelle läßt sich ein Schwächungsfaktor für Spaltneutronen ermitteln, der für den hier vorliegenden Fall einer isotropen Einstrahlung von einer Punktquelle an der Phantomoberfläche gilt:

$$\Phi_G(x) = \Phi_L(x) \cdot e^{-bx} = \frac{\Phi_0}{4\pi x^2} \cdot e^{-bx} \quad 5.1$$

Abb. 3113.12 zeigt den Schwächungsfaktor in Abhängigkeit vom Abstand zur Quelle ("Gewebetiefe"). Die hieraus ermittelte Relaxationslänge $1/b$ beträgt für die Neutronenflußdichte von Spaltneutronen $> 0,75$ MeV $11,4 \pm 1$ cm bezogen auf die vorliegende Bestrahlungsgeometrie und das relativ inhomogene gewebeäquivalente Material im Phantom insbesondere im Bereich der Lungen. Damit kann die Neutronenflußdichte für eine vorgegebene Gewebetiefe aus dem quadratischen Abstandsgesetz und dem Schwächungsfaktor ermittelt werden. Dies ist jedoch nur für Gewebetiefen von mehr als 10 cm anwendbar, da im Bereich der ersten Relaxationslänge ein Flußdichteaufbau stattfindet.

Für den γ -Strahlungsanteil der ^{238}Pu -Kapsel wurde ein Schwächungsfaktor mit $1/b = 28,6$ cm ermittelt.

Abschätzung der Körperdosis

Für die Ermittlung der Äquivalentdosis an interessierenden Stellen im Phantom wurden die in Tab. 3113.6 wiedergegebenen Konversionsfaktoren benutzt. Für die Umrechnung der Neutronenfluenz wurde die Energiedosis in einem dünnen Gewebeelement (Erststoßdosis) zugrundegelegt. Als Qualitätsfaktor wurde $Q = 3$ für thermische und mittelschnelle Neu-

tronen und $Q = 10$ für schnelle Neutronen angesetzt.

Die für die ^{252}Cf -Quelle ermittelten Äquivalentdosisanteile sind in Tab. 3113.7 für verschiedene Stellen im Phantom wiedergegeben. Der Beitrag thermischer und mittelschneller Neutronen kann demnach bei der Dosisabschätzung vernachlässigt werden. Für die ^{238}Pu -Kapsel, die für den Herzschrittmacher verwendet wird, wurde eine nominelle Neutronenquellstärke von $1,4 \times 10^3$ n/sec angenommen. Tab. 3113.8 gibt die zu erwartende Äquivalentdosis des Herzschrittmachers unmittelbar an der Körperoberfläche, in Körpermitte und an der Außenseite in Quellhöhe sowie die Äquivalentdosis im Gonadenbereich wieder. Die in Freiluft in 50 cm Entfernung vom Herzschrittmacher ermittelte Äquivalentdosisleistung ist repräsentativ für die Strahlenbelastung der Umgebung. Die Meßergebnisse zeigen, daß der Äquivalentdosisanteil schneller Neutronen etwa um einen Faktor 6 höher ist als der Anteil der γ -Strahlung.

Tab. 3113.6: Fluenz-Neutronendosis-Umrechnung

Energiebereich	Spektrum	Neutronenfluenz für	
		Energiedosis n/cm ² pro 1 rad	Äquivalentdosis n/cm ² pro 1 rem
Thermische N.	Maxwellverteilung < 0,5 eV	$5,0 \cdot 10^{10}$	$1,67 \cdot 10^{10}$
Mittelschnelle N.	1/E Spektrum 0,5 eV bis 0,75 MeV	$3,9 \times 10^9$	$1,3 \cdot 10^9$
Schnelle N.	Spaltspektrum > 0,75 MeV	$3,3 \times 10^8$	$3,3 \times 10^7$

Tab. 3113.7: Äquivalentdosisleistung einer ^{252}Cf -Quelle (Quellstärke $1,4 \times 10^9 \text{ n/s}$) in einem Alderson-Menschphantom

	Äquivalentdosisleistung in rem/h				
	D_γ	D_{th}	D_m	D_{sch}	D_n
<u>Quellenhöhe:</u>					
in 2 cm	45,0	0,69	0,54	3000	3000
Körpermitte	1,8	0,74	0,07	16	16,8
Körperaußenseite	0,36	0,01	0,002	1,3	1,3
<u>Gonaden:</u>	0,13	0,02	0,001	0,6	0,62

Tab. 3113.8: Personenbelastung durch eine ^{238}Pu -Quelle (~ 150 mg ^{238}Pu mit 0,26 ppm ^{236}Pu) in einem Herzschrittmacher

	Äquivalentdosisleistung $\mu\text{rem/h}$			Jahresdosis mrem/a
	D_γ	D_n	D_{tot}	
<u>Quellenhöhe:</u>				
in 2 cm	875	3000	3875	34 000
Körpermitte	13,4	16,8	30,2	265
Körperaußenseite	2,4	1,3	3,7	32
<u>Gonaden:</u>	0,9	0,6	1,5	13
<u>Freiluft:</u>				
50 cm	1,5	4,8	6,3	55

Durch den Zerfall von ^{236}Pu entstehen zusätzliche γ -Nuklide, welche die γ -Äquivalentdosisleistung bei einem ^{236}Pu -Gehalt von etwa 0,26 ppm im ungünstigen Fall innerhalb der vorgesehenen Lebensdauer der ^{238}Pu -Batterie von 10 Jahren bis zu einem Faktor 2 erhöhen kann. Die Gesamtbelastung der Gonaden liegt demnach bei 1/10 der natürlichen Strahlenbelastung. Die Äquivalentdosisleistung in einem Abstand 2 cm von der Quelle beträgt hingegen 34 rem/a (Abb. 3113.13).

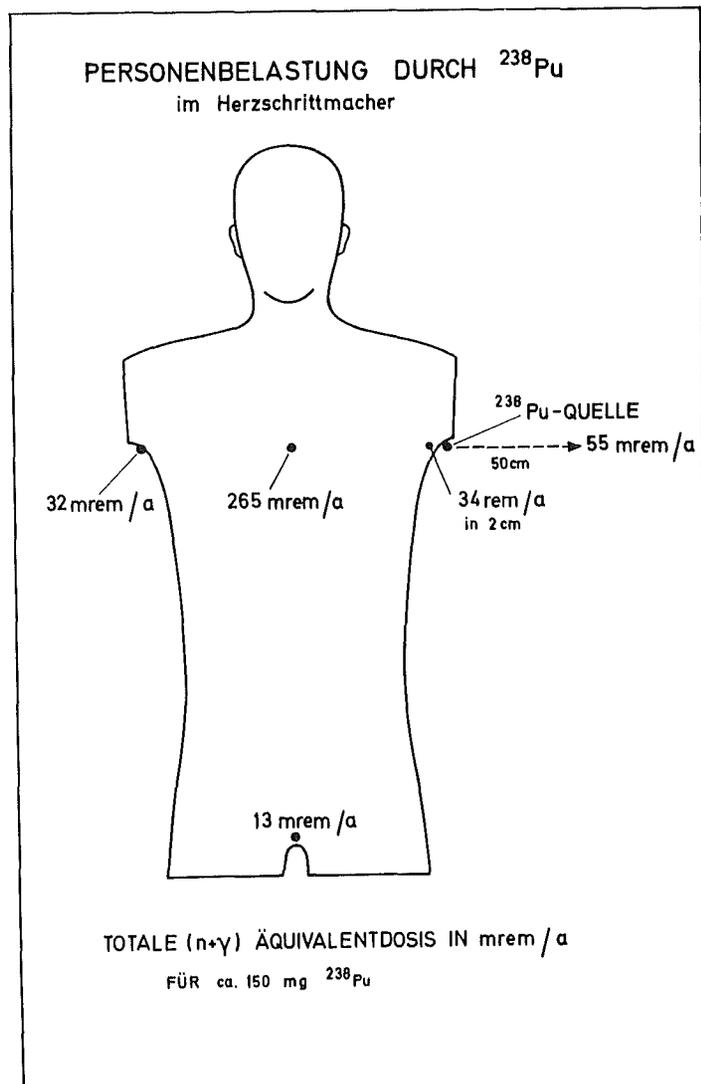


Abb. 3113.13: Personenbelastung durch ^{238}Pu -Herzschrittmacher

3120 NEUTRONENQUELLEN IN THERAPIE UND DIAGNOSE

Stoffwechselerkrankungen spielen eine nicht unbedeutende Rolle in der Krankenstatistik. Bei ihrer Diagnose ist oft die Bestimmung der Elemente Calcium und Phosphor im Knochengerüst von Bedeutung. So leiden ca. 10% der Bevölkerung der BRD an Osteoporose. Personen, deren Nieren ungenügend arbeiten, zeigen über längere Zeit Veränderungen im Ca-Spiegel. Die heute angewendeten Röntgenmethoden und Gamma-Absorptionsmethoden sind nur bedingt aussagekräftig. Die Anwendung der In-vivo-Aktivierungsanalyse kann hier weiterhelfen. Dabei kommt der Strahlenquelle besondere Bedeutung zu. Die bisher üblichen - Zyklotron, Reaktor oder Neutronengenerator - sind im klinischen Bereich nur schwer einsetzbar bzw. für diesen Zweck wenig geeignet. Neutronenquellen mit Radioisotopen können das Verfahren wesentlich vereinfachen und damit zu einer breit gestreuten Anwendung führen.

3122 ANWENDUNG VON NEUTRONENQUELLEN

3122.1 IN-VIVO-AKTIVIERUNGEN

G. Seiler, H. Würz, W. Lange

Ziel des Vorhabens ist die Bereitstellung von Verfahren und Geräten zur medizinischen Diagnostik mit Hilfe der In-vivo-Aktivierungsanalyse. Erstes Anwendungsziel: Bestimmung der Konzentrationen von Ca und P in der Hand.

Das Programm für 1973 sah vor, erste Versuche unter Verwendung von ^{252}Cf als Neutronenquelle durchzuführen.

Die Bestimmung der Gehalte an Calcium und Phosphor im Knochen ist bei bestimmten Krankheiten von besonderer Bedeutung. Die Neutronenaktivierungsanalyse besitzt gegenüber anderen Methoden einige Vorteile, die eine klinische Anwendung gerechtfertigt erscheinen lassen (71). Daher soll mit den Arbeiten im Rahmen des Projekts Actiniden ein Verfahren entwickelt werden, mit dem der Gehalt an Ca und P in der Hand

unter Verwendung von ^{252}Cf als Neutronenquelle bestimmt werden kann.

Das Verfahren arbeitet nach folgendem Prinzip: Die Hand umfaßt die Neutronenquelle. Dabei werden Ca und P nach den angegebenen Reaktionen aktiviert:

- $\text{Ca-48}(n,\gamma)\text{Ca-49}$; $\sigma = 1,1 \text{ b}$ für thermische Neutronen
- $\text{P-31}(n,\alpha)\text{Al-28}$; $\sigma > 0$ für $E_n > 2 \text{ MeV}$

Die aktivierte Hand wird anschließend zwischen zwei großflächigen NaJ-Detektoren ausgemessen. Zur Bestimmung der Konzentrationen werden für Ca die Linie bei 3,1 MeV von ^{49}Ca und für P die Linie bei 1,78 MeV von Al-28 ausgewertet.

Im Berichtszeitraum wurden in theoretischen Abschätzungen und Experimenten die Aussichten des skizzierten Verfahrens untersucht.

1. Theoretische Abschätzungen

Bei den theoretischen Überlegungen, die im Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik durchgeführt wurden, wurde die erreichbare Ausbeute der zu messenden γ -Strahlung und damit die Genauigkeit des Verfahrens abgeschätzt.

Für die Rechnungen diene folgendes Modell: Die bei der Aktivierung geschlossene Hand wurde angenähert durch einen Hohlzylinder mit den Radien $r_1 = 15 \text{ mm}$ und $r_2 = 40 \text{ mm}$, die Höhe betrug 90 mm. Als Möglichkeiten für die Neutronenquelle wurden eine Punktquelle und 2 Stabquellen verschiedener Länge betrachtet. Für die Messung der induzierten γ -Strahlung wurden der erwähnte Hohlzylinder (Faust) und eine ebene Fläche (geöffnete Hand) angenommen.

Die Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- a) Mit einer stabförmigen Quelle von ca. 12 cm Länge ist eine annähernd gleichförmige Aktivierung der Hand möglich.

- b) Bei der Messung der γ -Quanten liefert die ausgestreckte Hand eine höhere Ausbeute als die geschlossene Hand.
- c) Nach Tab. 3122.1 sind bei einer Bestrahlungszeit von 1 min Änderungen in der Konzentration von 3 bis 4% noch nachweisbar.

Tab. 3122.1: Berechnete Peakinhalt bei Aktivierung mit einer Stabquelle von 12 cm Länge mit 250 μg Cf-252 und bei Messung in ebener Geometrie zwischen 2 NaJ-Detektoren der Größe 4" \varnothing x 3".

Element	Menge in g	Peakinhalt in 20 min bei 40 sec Wartezeit	
		$t_b = 1 \text{ min}$	$t_b = 2 \text{ min}$
Ca	10	1350	2600
P	4	1150	2000

2. Störreaktionen

Außer Ca und P werden noch andere Elemente aktiviert. Ihre emittierten γ -Quanten können die Messungen erschweren oder verfälschen. Daher wurden die 12 Hauptelemente im Körper auf ihre Reaktionen mit Neutronen anhand der Nuklidkarte und in Aktivierungsexperimenten untersucht. Es ergab sich, daß im Wesentlichen nur Chlor Störungen verursachen kann. Nach der Reaktion $^{37}\text{Cl} (n, \gamma) ^{38}\text{Cl}$ werden γ -Quanten mit 1,64 MeV emittiert, die sich dem Peak von ^{28}Al bei 1,78 MeV überlagern. ^{37}S , entstanden nach $^{37}\text{Cl} (n, p)$, emittiert γ -Quanten mit 3,1 MeV, d.h. mit derselben Energie wie ^{49}Ca .

Die Aktivierung von Tierknochen bestätigte dieses Ergebnis und zeigte, daß die Beiträge von Cl die Messungen nicht wesentlich stören.

3. Strahlenbelastung

Zur Abschätzung der Dosis wurde die Dosisrate \dot{D} im Abstand r einer Punktquelle berechnet nach der Gleichung

$$\dot{D} = C \cdot \frac{Q_n}{4\pi r^2} \quad 3.1$$

C ist eine Konstante, die die Neutronen- und Gammastrahlung von Cf-252 berücksichtigt und in Luft den Wert $C = 1,31 \cdot 10^{-1} \text{ mrem h}^{-1}/\text{ncm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ annimmt; Q_n ist die Neutronenquellstärke (72).

In Tab. 3122.2 sind die berechneten Werte für die Dosis an der Innen- bzw. Außenfläche der Hand bei verschiedenen Bedingungen angegeben. Dabei ist berücksichtigt, daß der Neutronenfluß in der Umgebung einer Stabquelle kleiner ist als bei einer Punktquelle gleicher Quellstärke.

Tab. 3122.2: Berechnete Dosiswerte bei verschiedenen Bestrahlungsbedingungen; $Q_n \hat{=} 250 \mu\text{g Cf-252}$.

r_1 (cm)	r_2 (cm)	t_b (min)	D_1 (rem)	D_2 (rem)
1	4	1	22,3	4,0
2	5	1	10,2	2,6
2	5	2	20,3	5,3

In Zusammenarbeit mit der Abt. Strahlenschutz und Sicherheit wurde die Dosis einer Cf-Quelle in einer Probe mit mehreren Detektoren gemessen (Au-Folie, S-Tabelle, Th-Folie, Makrofol E, TLD 600 und 700). Nach Korrektur der Meßwerte auf die Bedingungen nach Tab. 3122.2 ergaben sich für $r_1 = 1 \text{ cm}$ und $t_b = 1 \text{ min}$ Werte zwischen 10 rem und 17 rem. Damit lassen sich mit dem angestrebten Verfahren mehrere Bestimmungen

im Jahr durchführen, wenn man von der maximal zulässigen Dosis für beruflich strahlenexponierte Personen von 75 rem pro Jahr in der Hand ausgeht.

Aufgrund der experimentellen und theoretischen Ergebnisse wurde in Zusammenarbeit mit der Abt. Reaktorbetrieb und Technik eine Bestrahlungsanlage entworfen, die zur Zeit gefertigt wird. Der Aufbau ist aus Abb. 3122.1 zu ersehen. Die Anlage besteht aus einer stationären Abschirmung und einem Transportbehälter, in dem auch die Aktivierung stattfindet. Die Hand des Patienten umfaßt einen Abstandshalter, in den die Quelle mit einer Schubstange geschoben wird. Der Einsatz kann herausgenommen werden, so daß alle Vorbereitungen außerhalb der Bestrahlungsanlage durchgeführt werden können. Zur Optimierung des thermischen Neutronenflusses ist die Hand mit Wasser umgeben.

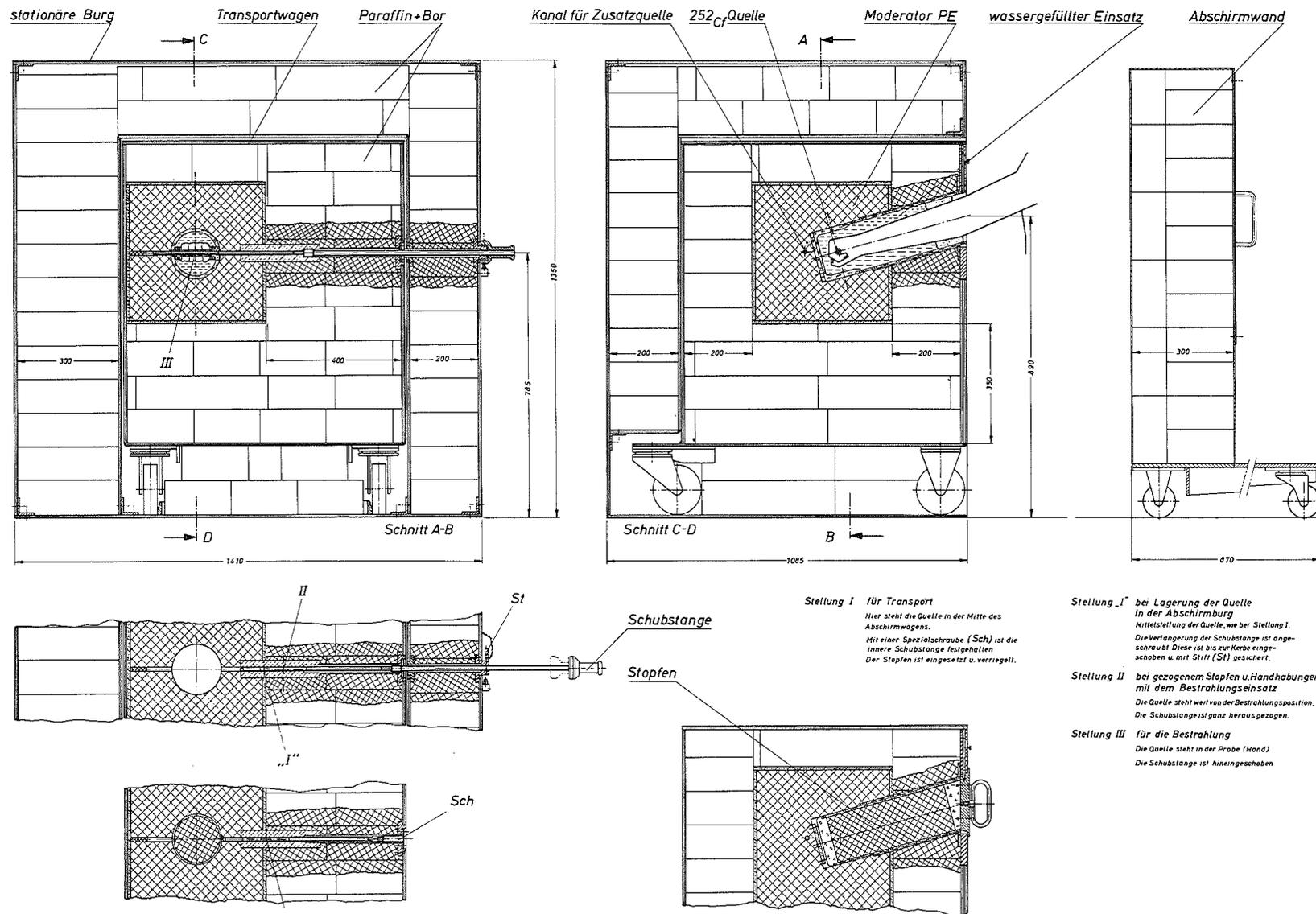


Abb. 3122.1: Bestrahlungsanlage

3200 EXPLORATION VON ERZLAGERSTÄTTEN

3210 LAGERSTÄTTENVERMESSUNG

Der störungsfreie Bezug ausreichender Mengen mineralischer Rohstoffe und das Bereitstellen ausreichender Mengen Energie sind die tragenden Säulen der Volkswirtschaft unseres Landes. Mit dem "Programm zur Sicherung der BRD mit mineralischen Rohstoffen", entsprechend dem Regierungsbeschluß vom 26.6.1970, soll dem Rechnung getragen werden. In diesem Programm ist neben der laufenden Beobachtung der internationalen Märkte, der verstärkten in- und ausländischen Prospektions-tätigkeit, die Entwicklung und Erprobung neuer Prospektionsmethoden und -Geräte von großer Bedeutung.

Im terrestrischen Bereich stehen die Erze der Metalle Nickel, Kupfer, Blei, Wolfram, Zinn und Zink sowie Baryt und Flußspat im Vordergrund des Interesses. Bei Lagerstätten im Flachseebereich richtet sich das Interesse auf Mineralseifen, Ansammlungen schwerer Mineralien, die als großflächige Sedimentlager auftreten. Sie enthalten Gold, Platin, Zinn, Zink, Monazit, Magnetit, Chromit sowie Rutil und Ilmenit. Im Mittelpunkt des Interesses des Tiefseebergbaues stehen die Mangan-knollen, die als unregelmäßig geformte Körper weite Gebiete des Pazifik und des Atlantik bedecken. Ihr beachtlicher Gehalt an Nickel, Kupfer und Kobalt macht sie für eine künftige Versorgung mit diesen Metallen besonders interessant.

Eine wichtige Phase in der Auffindung und Nutzung von Lagerstätten ist die Exploration, in der alle für eine Abbauentcheidung und für einen Abbau notwendigen Daten ermittelt werden. Hier fallen große Mengen an Gesteinsproben an, die zu katalogisieren und zu analysieren sind, deren Verarbeitung geraume Zeit in Anspruch nimmt. Eine Verbesserung hinsichtlich des finanziellen und zeitlichen Aufwandes ist wünschenswert, insbesondere, da im Hinblick auf den wachsenden Bedarf und die zunehmende Verknappung an Rohstoffen eine verstärkte Explorations-tätigkeit notwendig wird. Hier haben kerntechnische Methoden ein beträchtliches Anwendungspotential. Sie sind elementspezifisch, erlauben in-situ-Analysen und gestatten, verbunden mit einer on-line Datenverarbeitung, Erzkonzentrationsbestimmungen in kurzer Zeit.

3211 ANALYSE VON UNTERIRDISCHEN LAGERSTÄTTEN

3211.1 NEUTRONENBOHRLOCHSONDE

Ziel dieses Vorhabens ist es, für die Exploration unterirdischer Lagerstätten Analysenmethoden auf der Basis neutroneninduzierter Methoden zu entwickeln und der Rohstoffindustrie ein attraktives und kostensparendes on-line in-situ-Analysengerät zur Verfügung zu stellen.

Das Programm für 1973 sah vor, aufbauend auf dem ersten Feldeinsatz einer Neutronenbohrlochsonde bei Mittersill, eine vertiefende Behandlung der erreichbaren Meßgenauigkeit für Aktivierungsmessungen in Bohrlöchern (Einflüsse der Gesteinsmatrix, der Geometrie, des Wassergehaltes u.a.) durchzuführen, eine entsprechend verbesserte Versuchssonde mit on-line Datenverarbeitung zu erstellen und weitere Feldeinsätze mit Experimenten in Modellbohrlöchern vorzubereiten.

1. Physikalische Grundlagen

H. Würz, R. Pepelnik, U. Fanger, H. Eberle, L. Buth

1.1 Einleitung

Der erste in-situ Einsatz der Bohrlochsonde in Mittersill (73) hat gezeigt, daß die Methode der neutroneninduzierten Gammaskopie zur Lagerstättenexploration geeignet ist. Sie gestattet die quantitative Bestimmung von Elementkonzentrationen und ermöglicht eine unabhängige Konzentrationsbestimmung, also ohne Referenz auf einen vorher bereits bekannten Wert.

Zur Abschätzung der Genauigkeit der Meßmethode und zur unabhängigen Konzentrationsbestimmung wurden folgende Untersuchungen durchgeführt:

- a) Bestimmung der Nachweisempfindlichkeit eines Ge(Li)-Detektors für Bohrlochgeometrie;
- b) Untersuchung der Neutronenselbstabschirmung durch Resonanzen im Einfangquerschnitt der nachzuweisenden Materialien;

- c) Systematische Überprüfung der Rechenresultate durch Experimente an einer Modellanordnung;
- d) Untersuchung von Matrixeinflüssen auf die Genauigkeit der Konzentrationsbestimmung.

Außerdem wurde die Verwendbarkeit der Bohrlochsonde zur Exploration anderer Lagerstätten untersucht. Dazu wurden numerische Abschätzungen und erste experimentelle Untersuchungen durchgeführt.

1.2 Detektorkalibrierung

Die geforderte unabhängige Konzentrationsbestimmung kann nur im Zusammenspiel der experimentellen Resultate mit theoretischen Berechnungen gewonnen werden. Dabei werden die gemessenen Gammalinienintensitäten (Peakzählraten) mit Hilfe der experimentell bestimmten Detektorempfindlichkeit auf einen Gammafluß am Ort des Detektors umgerechnet. Durch Vergleich dieses Gammaflußwertes mit tabellierten Werten kann die gesuchte Konzentration bestimmt werden. Die Gammaempfindlichkeit ϵ eines Detektors wird zweckmäßigerweise definiert als das Verhältnis von gemessener Peakzählrate zu Gammafluß im Zentrum des Detektors. ϵ wurde für einen Ge(Li)-Detektor, der dem in Mittersill eingesetzten sehr ähnlich ist, für eine Gammaenergie E_γ von 686 keV bestimmt. Gammaquanten dieser Energie werden beim Zerfall des W-187-Isotops emittiert. Der verwendete Detektor hat die Abmessungen $D = 38$ mm, $H = 38$ mm. Abb. 3211.1 zeigt eine Röntgenaufnahme der Detektordiode mit Kapselung, Halterung und Kühlfinger. Die Diode ist so angeordnet, daß die γ -Strahlung aus einem großen Raumwinkelbereich ohne nennenswerte Transmissionsverluste an Strukturmaterialien zum Detektor gelangen kann.

Ziel der Kalibrierung war der Nachweis, daß die Empfindlichkeit ϵ für die Bohrlochgeometrie mit einer einfachen Methode bestimmt werden kann, bei der lediglich eine punktförmige Gammaquelle bekannter Quellstärke benötigt wird. Für diesen Nachweis wurde eine dicke Wolframfolie ($d = 53,5$ μ) mit den Abmessungen $12,7 \times 6,0$ cm (zu einer Zylinderschale gebogen) in einem bekannten thermischen und epithermischen Neutronenfeld bestrahlt.

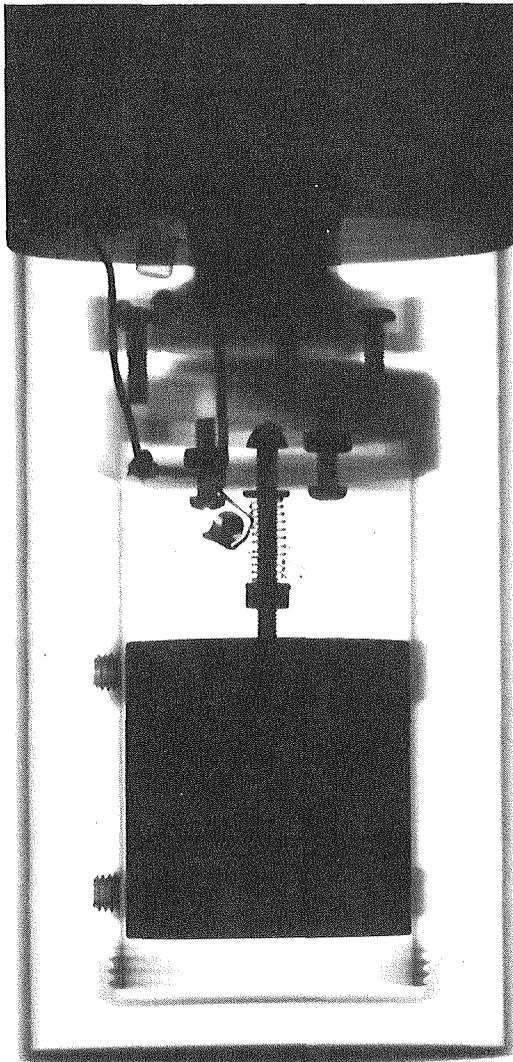


Abb. 3211.1

Röntgenaufnahme des Detektorkopfes.

Auf der Abbildung erkennt man die Ge(Li)-Detektordiode mit Kapselung (Alu), die Detektorhalterung, die Spannungsversorgung und den Detektor-Kühlfinger.

Anschließend wurde die Folie als halbe Zylinderschale ($\phi=\pi$) um den zylindrischen Gammadetektor ($r_0 = 4,05$ cm) gelegt und die Peakzählrate P_k der 686 keV-Linie für verschiedene axiale Abstände y^* des Folienmittelpunkts vom Detektormittelpunkt bestimmt.

Unter Berücksichtigung der Aktivierungsbeiträge durch thermische, epithermische und Resonanzneutronen wurde der Fluß der Gammaquanten $\Phi_\gamma(r=0, E_\gamma, y^*)$ der Energie E_γ am Ort $r=0$ (Zylinderachse gleich Bohrlochzentrum) als Funktion des axialen Abstands y^* berechnet.

Mit der obigen Definition der Detektorempfindlichkeit $\epsilon(E_\gamma, y^*)$ erhält man schließlich:

$$\epsilon(E_\gamma, y^*) = \frac{Pk(y^*, E_\gamma)}{\Phi_\gamma(r=0, y^*, E_\gamma)} \quad 1.2.1$$

In Tabelle 3211.1 sind die Resultate von Messung und Rechnung und die daraus bestimmte Empfindlichkeit ϵ für verschiedene axiale Abstände y^* zusammengestellt. Die in Tabelle 3211.1, Spalte 2 angegebenen experimentellen Werte wurden durch Mittelung der Werte für die Winkelbereich 0-180 Grad und 180-360 Grad gewonnen.

Tabelle 3211.1 Detektorempfindlichkeit für verschiedene Axialabstände

y^* (mm) Abstand Folien- mittelpkt.-Detekt. Mittelpunkt	Peakzählrate $Pk(y^*, E_\gamma)$ counts/sec	Gammafluß am Ort des Detektors $\Phi_\gamma(O, y^*, E_\gamma)$ $\gamma/cm^2 sec$	Empfindlichkeit $\epsilon(E_\gamma, y^*)$ $(\frac{counts/sec}{\gamma/cm^2 sec})$
0	3876	3526	1,1
+30	2848	2710	1,05
+60	1410	1310	1,08
+90	756	750	1,01

$\epsilon(E_\gamma, y^*)$ nimmt mit wachsendem y^* ab, entsprechend der Tatsache, daß die Gammaquanten mit wachsendem y^* größer werdende Wege in den toten Zonen des Detektors und in Strukturmaterialien zurücklegen müssen. Damit wird die Peakzählrate Pk durch Transmissionsverluste reduziert. Die Rechnung berücksichtigt diese Verluste dagegen nicht.

Die Peakzählrate Pk wurde auch für negative y^* (Detektormittelpunkt oberhalb Folienmittelpunkt) bestimmt. Abb. 3211.2 zeigt die über den vollen Azimutwinkel ϕ gemittelten Werte als Funktion von y^* . Die Kurve ist symmetrisch zu $y^*=0$. Damit wird der aus Abb. 3211.1 gefolgerte Sachverhalt bestätigt.

Zum Vergleich wurde ϵ für denselben Ge(Li)-Detektor mit Hilfe einer Cs-137 Punktquelle ($E_\gamma = 662 \text{ KeV}$) bestimmt. Dazu wurde die Abhängigkeit von ϵ vom radialen Abstand zwischen Detektormittelpunkt und Gammaquelle (r) und vom Azimutwinkel ϕ untersucht. Die ϕ -gemittelte Empfindlichkeit steigt mit wachsendem radialen Abstand r infolge abnehmender γ -Absorption in den toten Zonen des Detektors und infolge von Randeffekten an.

Abb. 3211.3a zeigt die gemessene Abhängigkeit. Für den zur Bestimmung von ϵ mit der Wolframfolie verwendeten Abstand $r_0 = 4,05 \text{ cm}$ ergibt sich ein Wert von $\epsilon = 1,07 \frac{\text{c/sec}}{\gamma/\text{cm}^2\text{sec}}$ in guter Übereinstimmung mit den in Tabelle 3211.1 angegebenen Werten.

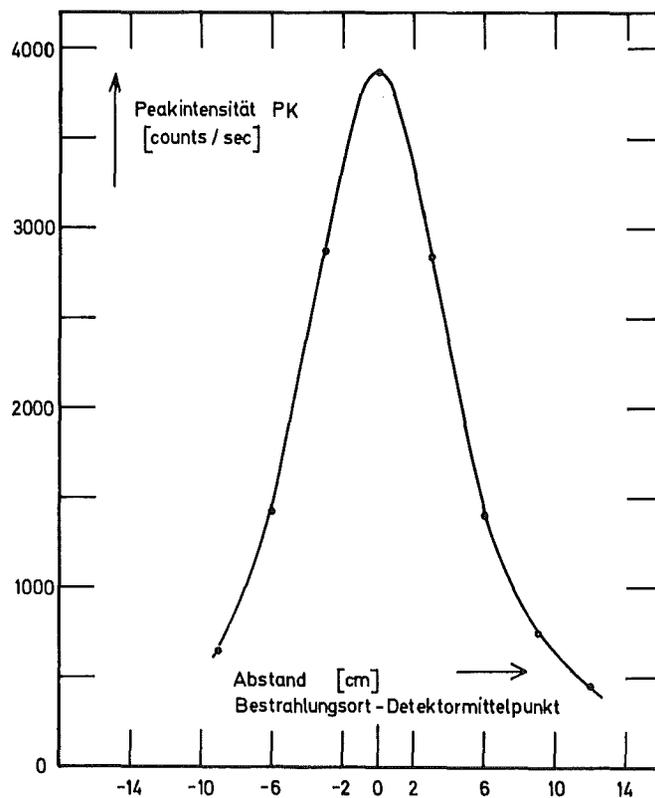


Abb. 3211.2: Gemessene azimutwinkel-gemittelte Peakintensität P_k der 686 keV ^{187}W -Gammalinie als Funktion des Abstandes Folienmittelpunkt (Bestrahlungsort) - Detektormittelpunkt

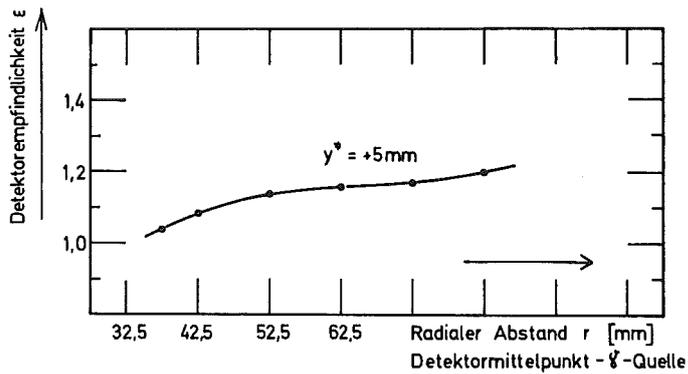


Abb. 3211.3a: Mittels Cs-137 Gamma-Punktquelle gemessene Empfindlichkeit ϵ als Funktion des Abstands Detektormittelpunkt-Gammaquelle

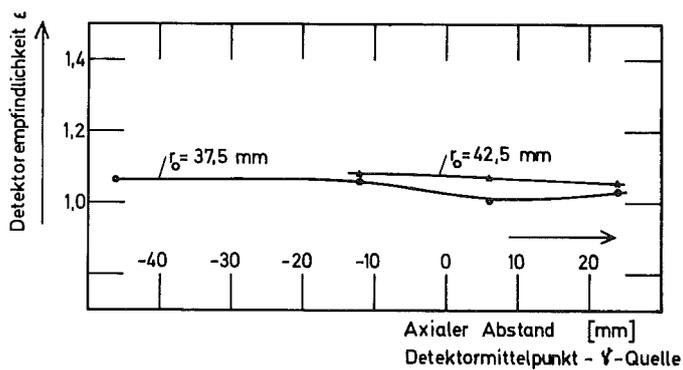


Abb. 3211.3b: Detektorempfindlichkeit ϵ als Funktion des axialen Abstands y^* für zwei feste radiale Positionen r_0 .

1.3 Verbesserte Behandlung der Neutronenselbstabschirmung in wolframhaltigen homogenen Materialien

Resonanzen im Neutronen-Einfang- und Streuquerschnitt bewirken, daß der Neutronenfluß im Energiebereich der Resonanzen eine inverse Resonanzstruktur zeigt. Zur Berechnung von Reaktionsraten $C(r)$ gemäß:

$$C(r) = N \int_{\Delta E} \sigma_a(E) \phi(E, r) dE \quad 1.3.1$$

muß damit die energetische Form von σ_a und ϕ berücksichtigt werden. Per definitionem (V) wird das Integral in 1.3.1 ersetzt durch:

$$C(r) = N I_\infty f_a(\sigma_0) \phi_{epi}(r) \quad 1.3.2$$

f_a = energetischer Resonanzselbstabschirmfaktor, wird gewöhnlich als Funktion von σ_0 angegeben. Dabei ist σ_0 der auf ein Resonanzabsorberatom der Sorte A bezogene makroskopische totale Wirkungsquerschnitt der Materialmischung.

$$\sigma_0 = \frac{1}{N} \sum_i N_i \sigma_{i,tot} \quad 1.3.3$$

Unter Verwendung von neueren experimentellen Daten über Wolframresonanzparameter (74) wurde f_a als Funktion von σ_0 im Energiebereich $10,0 \text{ eV} \leq E \leq 21,5 \text{ eV}$ berechnet. Dazu wurde der Code RABBLE benützt (75). Abb. 3211.4 zeigt den Selbstabschirmfaktor f_a .

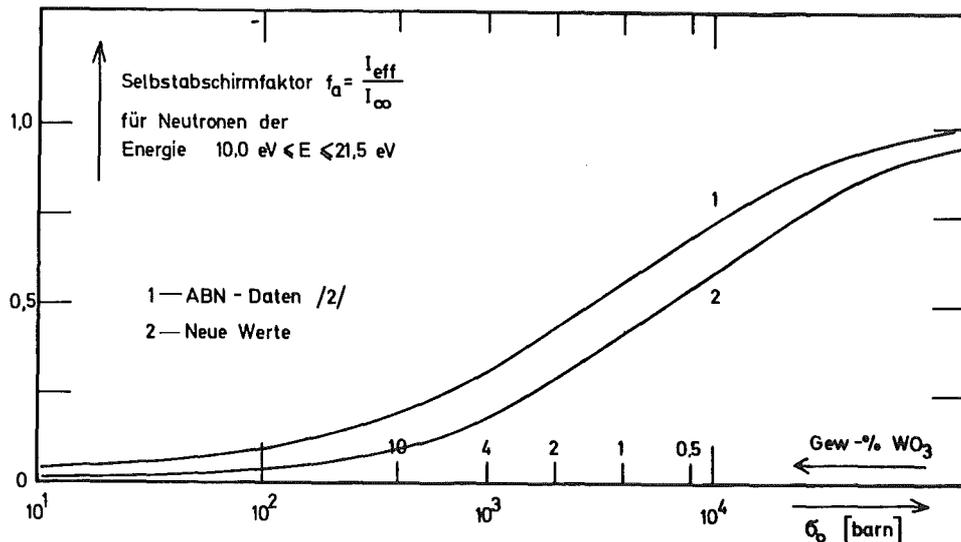


Abb. 3211.4: Neutronenselbstabschirmfaktor f_a für die Neutronenenergie $10.0 \text{ eV} \leq E \leq 21.5 \text{ eV}$ als Funktion des Wolframgehaltes der Erzlagerstätte.

Zum Vergleich ist der aus den ABN-Daten (76) für Wolfram entnommene Verlauf von f_a mit eingezeichnet. Die neuen Resonanzparameter bewirken eine Erhöhung der Resonanzspitzen im Wirkungsquerschnitt, entsprechend einer Erhöhung von I (Resonanzintegral bei unendlicher Verdünnung) von 396 auf 504 barn. Deshalb ergibt sich eine stärkere Resonanzselbstabschirmung und damit niedrigere f_a -Werte. Auf der Abszisse von Abb. 3211.4 sind die Gewichtsprozent WO_3 mitangegeben. Sie gelten für Hornblendefels-Scheeliterzmischungen. Bei Wolframgehalten von 1% wird die Resonanzeinfangrate durch Abschirmungseffekte auf 42% reduziert.

1.4 Vergleich von Theorie und Experiment an einer Modellanordnung

An dem zur Simulation der Wolframexploration in Mittersill in der Technikumshalle des INR aufgebauten Modellexperiment wurden Neutronenflußprofile und Peakintensitäten der induzierten Gammaquanten der Energie $E_\gamma = 686$ keV gemessen. Den Aufbau des Modellexperiments zeigt schematisch Abb. 3211.5. Besonderes Gewicht wurde dabei der Simulation der Bohrlochgeometrie verliehen.

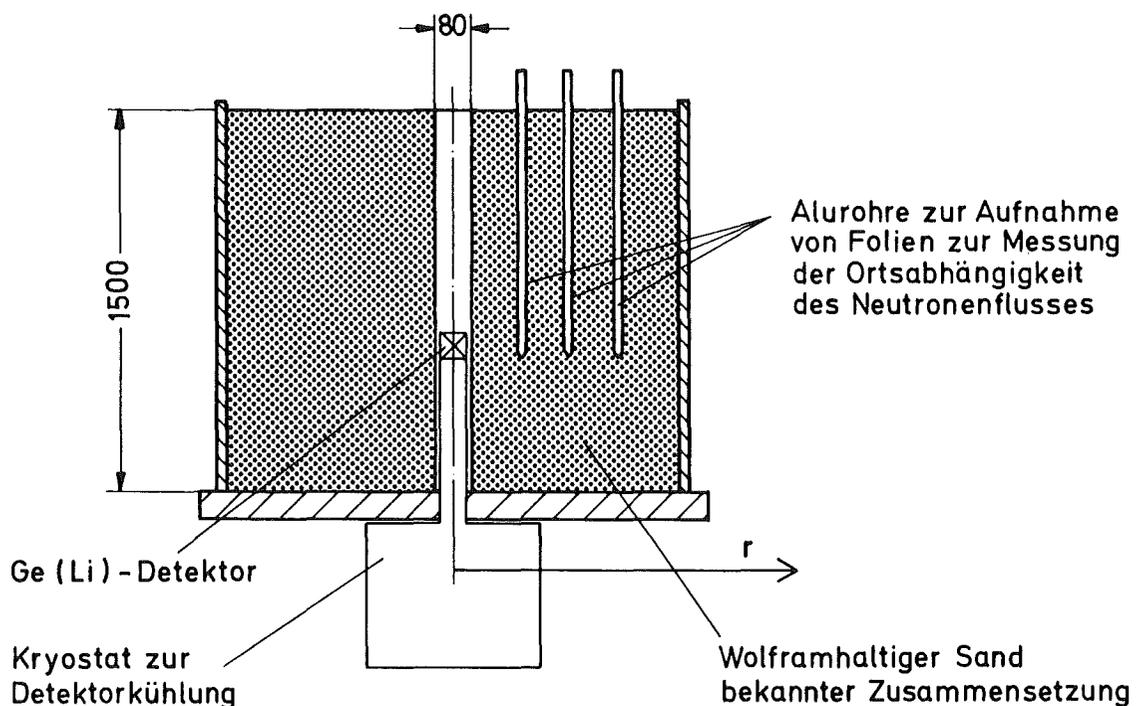


Abb. 3211.5:

Anordnung für Modellversuche für die Analyse von Metallen in Bohrlöchern

Nach erfolgter Bestrahlung des wolframhaltigen Sandes mit der ^{252}Cf -Quelle wurde die Peakintensität der 686 keV W-Gammaquanten als Funktion des Abstands y^* zwischen Quellposition und Detektormittelpunkt gemessen.

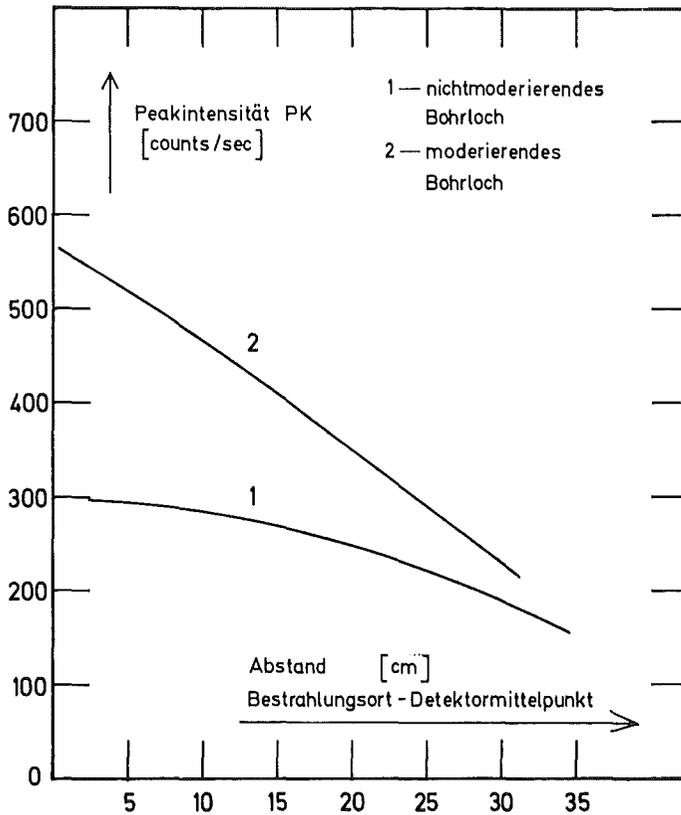


Abb. 3211.6

Im simulierten Bohrloch der Modellanordnung gemessene Linienintensität der 686 keV Gammaquanten als Funktion des Abstands Quellposition-Detektormittelpunkt für das trockene und das moderierende Bohrloch. Das moderierende Bohrloch enthält eine Quellmoderation bestehend aus 1,2 cm Polyäthylen und weitere 5 mm Polyäthylen.

Abb. 3211.6 zeigt die gemessene Peakzählrate $P_k(E_\gamma, y^*)$ als Funktion von y^* für das trockene Bohrloch und ein Bohrloch, bestehend aus 4,5 mm Polyäthylen (PE) zur Simulation eines wassergefüllten Bohrlochs und einer zusätzlichen Quellmoderation von 1,2 cm PE. Der letzte Fall entspricht der in Mittersill verwendeten Anordnung. Der Abb. 3211.6 entnimmt man, daß die Quellmoderation die Gammaintensität erhöht. Diese Folgerung ist in Übereinstimmung mit Ergebnissen einer früheren Arbeit (77). Für $y^*=0$ betragen die Intensitätsunterschiede einen Faktor 2. Entsprechend dem steileren Ortsgradienten des Neutronenprofils in der moderierenden Anordnung zeigt das zugehörige ϕ_γ eine stärkere Abhängigkeit von y^* . Das ist für Aktivierungsmessungen vorteilhaft, da erstens die gegenseitige Beeinflussung benachbarter Bestrahlungspositionen reduziert wird und zweitens das Ortsauflösungsvermögen verbessert wird.

Während der Bestrahlungsphase wurden thermische und epithermische Neutronenflußprofile durch Aktivierung von Goldfolien gemessen. Die Goldfolien wurden in Quellhöhe in Aluminium-Bestrahlungsein-sätzen aktiviert. Abb. 3211.7 zeigt die Resultate für die drei untersuchten Fälle:

- a) Trockenes Bohrloch (ohne moderierendes Material);
- b) Bohrlochrand mit 4,5 mm Polyäthylen gefüllt (zur Simulation eines mit Wasser gefüllten Bohrlochs), moderierendes Bohrloch;
- c) Moderierendes Bohrloch mit zusätzlicher Quell-moderation aus Polyäthylen.

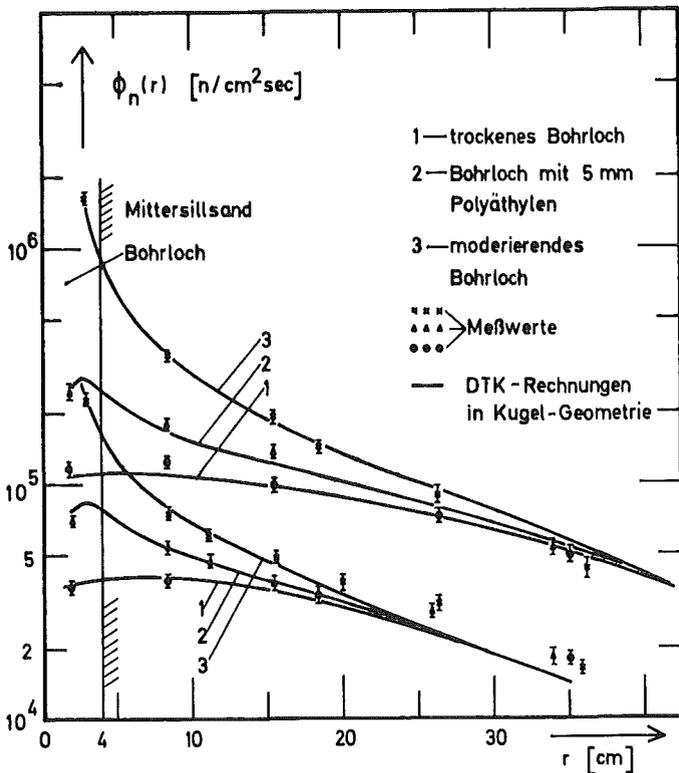


Abb. 3211.7

Im Sandfaß gemessene thermische und epithermische Neutronenfluß-profile und Vergleich mit be-rechneten Profilen.

Die gemessenen Neutronenflußprofile können nicht unmittelbar mit den berechneten verglichen werden, da die Quellkapselung neutronenab-sorbierendes Material enthält (u.a. wurde Tantal zur Kapselung ver-wendet). Die Kapselmaterialeien verursachen eine starke Flußdepression des thermischen Neutronenflusses in der Umgebung der Neutronenquelle. Diese Flußdepression wurde durch Messung von $\phi_{th}(r)$ und $\phi_{epi}(r)$ in Wasser nachgewiesen.

Aus Abb. 3211.8 erkennt man, daß $\phi_{th}(r)$ in unmittelbarer Quellnähe um den Faktor 2,2 reduziert wird. Die Reduktion von $\phi_{epi}(r)$ beträgt ca. 20%. Die für die Modellanordnung berechneten Neutronenflüsse wurden um diesen Effekt korrigiert. Dann erhält man die in Abb. 3211.7 eingezeichneten Flußprofile. Die berechneten thermischen und epithermischen Flußprofile stimmen in Bohrlochnähe innerhalb der Fehlergrenzen mit den Meßwerten überein.

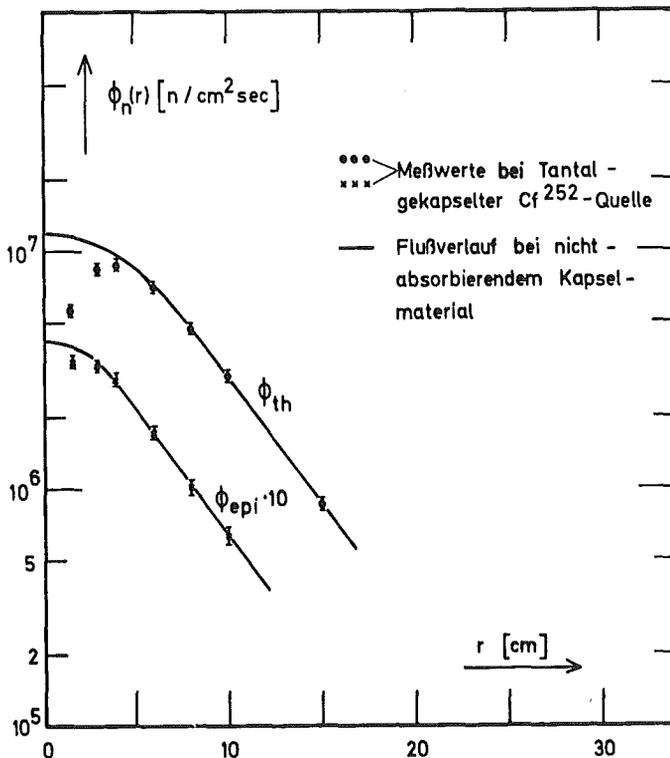


Abb. 3211.8

Mit der für die beschriebenen Messungen verwendeten Cf-Neutronenquelle gemessene Flußprofile in einem Wassertank.

Mit den experimentell bestimmten Neutronenflußprofilen wird der Fluß der induzierten Gammaquanten bei $r=0$ berechnet gemäß:

$$\phi_{\gamma}^R(r=0, E_{\gamma}) = \frac{1}{4\pi} \int S_{\gamma}(\underline{r}) \frac{e^{-\Sigma_{tot} r}}{r^2} dV \quad 1.4.1$$

Dabei sind in $S_{\gamma}(\underline{r})$ die Aktivierungsbeiträge aller Neutronen zu berücksichtigen.

Im einfachsten Fall ist ϕ_{γ}^R proportional zur Konzentration des nachzuweisenden Elements. Damit kann die Konzentration durch Vergleich des gemessenen γ -Flusses mit dem berechneten bestimmt werden. In Tabelle 3211.2 sind die Resultate für die Fälle trockenes Bohrloch und moderierendes Bohrloch mit zusätzlicher Quellmoderation angegeben.

Für das trockene Bohrloch wurde das Integral in Gleichung 1.4.1 in eindimensionaler Zylindergeometrie berechnet, für das moderierende Bohrloch in zweidimensionaler Zylindergeometrie. Der Spalte 3 entnimmt man, daß beide Fälle gleiche Konzentrationswerte ergeben. Daraus folgt, daß das Wolfram im Analysenvolumen (ca. 5000 cm³) homogen verteilt ist.

Tabelle 3211.2: Wolframkonzentrationsbestimmung mittels (n,γ)-Analyse an der Scheelitsand-Modellanordnung

Fall	Geometrie zur Berechnung von ϕ_{γ}^R	Wolframkonzentration
trockenes Bohrloch	eindimensionale Zylindergeometrie	0,74
moderierendes Bohrloch mit Quellmod.	zweidimensionale Zylindergeometrie	0,73

1.5 Untersuchungen zur Genauigkeit der Konzentrationsbestimmung

In einer früheren Arbeit (77) wurde bereits betont, daß die Größen Gesteinsdichte, Gesteinsfeuchte und Konzentration von Neutronenabsorbieren, wie Bor, Chlor, Gadolinium und/oder Lithium die Genauigkeit der Konzentrationsbestimmung erheblich beeinflussen. Theoretische Betrachtungen, durchgeführt für ein wassergefülltes Bohrloch zeigen allerdings, daß die beiden in der Regel unbekanntes Größen, Gesteinsfeuchte und Konzentration neutronenabsorbierender Materialien, dann die Analysengenauigkeit nur wenig beeinflussen, wenn die thermischen und epithermischen Neutronenflußwerte am Ort der Neutronenquelle gemessen werden. Das Verhältnis der Zählraten Z_{th}/Z_{epi} wird bestimmt von der Gesteinsfeuchte und von der Konzentration der Neutronenabsorber. Es ist nur schwach von der Gesteinsdichte abhängig, Matrixeffekte sind damit unerheblich. Abb. 3211.9 zeigt Z_{th}/Z_{epi} als Funktion der Parameter Feuchte und Neutronenabsorber für ein typisches Gestein einer Scheelitlagerstätte der Dichte $\rho = 3,0 \text{ g/cm}^3$.

Der Abbildung entnimmt man, daß ein Wert Z_{th}/Z_{epi} einer ganzen Skala von Feuchte- und Neutronengiftkonzentrationswerten zugeordnet werden muß. Dabei ist die Abhängigkeit so, daß zu wachsenden Feuchtwerten ein wachsender Konzentrationswert des Neutronenabsorbers gehört.

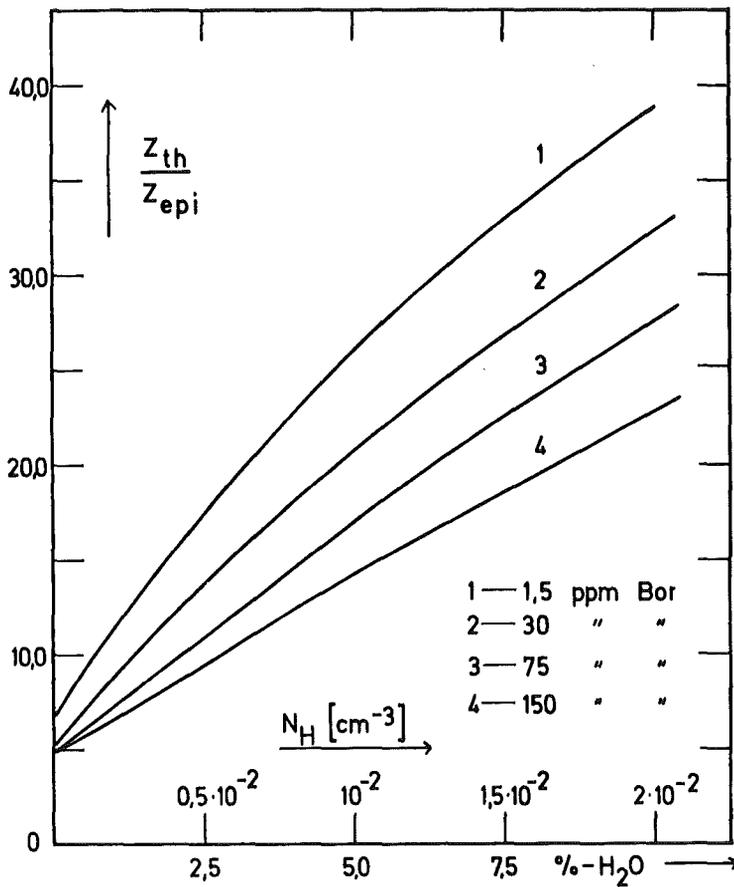


Abb. 3211.9:

Berechnete Zählratenverhältnisse Z_{th}/Z_{epi} für ein typisches Gestein einer Scheelitlagerstätte der Dichte $\rho = 3,0 \text{ g/cm}^3$ als Funktion der Parameter Feuchte und Neutronenabsorberkonzentration.

Die erreichbare Analysengenauigkeit ist in Tabelle 3211.3 angegeben. An diskreten Tiefenpositionen im Bohrloch werden die Werte Z_{th}/Z_{epi} gemessen. Für jeden Wert ergibt sich aus Abb. 3211.9 ein zugehöriger Vergiftungsbereich und ein zugehöriger Feuchtebereich. Trotz der beträchtlichen Schwankungsbreite dieser Werte bleibt, wie die Spalten 4 und 5 der Tabelle zeigen, der Fehler in der Konzentrationsbestimmung unterhalb $\pm 20\%$.

Tabelle 3211.3 :

Unsicherheiten in der Konzentrationsbestimmung auf Grund der unbekanntenen Größen Feuchtegehalt und Konzentration von Neutronengiften für zwei verschiedene γ -Energien. Die Werte gelten für ein typisches Gestein einer Scheelitlagerstätte der Dichte $\rho=3,0 \text{ g/cm}^3$

Meßwert Z_{th}/Z_{epi}	Vergiftungs- bereich ppm Bor	Feuchtebereich Gew.-% H_2O	Genauigkeit bei E_γ		
			686 keV Einfang therm.n	epi.n	6 MeV th.n
7,0	0 - 150	0 - 1,5	$\pm 8\%$	$\pm 19\%$	$\pm 14\%$
9,5	0 - 150	0,5 - 2,5	$\pm 5\%$	$\pm 15\%$	$\pm 10\%$
17,0	0 - 150	2,4 - 6,5	$\pm 9\%$	$\pm 11\%$	$\pm 16\%$

1.6 Konzept für das on-line Analysenverfahren

a) Meßwerterfassung

Bei der Prüfung der Befahrbarkeit eines Bohrloches werden in einem ersten Schritt der Durchmesser des Bohrloches (Kaliberlog) und die Dichte des umgebenden Gesteins (Density-log) als Funktion der Tiefe bestimmt. Für die spätere Auswertung werden diese Größen zusammen mit der Tiefenpositionsangabe zwischengespeichert. In einem zweiten Schritt, der bei der Neutronenaktivierungsanalyse gleichzeitig zur Aktivierung der interessierenden Bohrlochposition führt, wird das Neutronenflußprofil durch Messung des thermischen und epithermischen Flusses an zwei Punkten der Bohrlochachse - in Quellnähe und in ca. 60 cm Abstand zur Quelle - ermittelt. Aus dem Verhältnis der thermischen und epithermischen Zählraten in Quellnähe kann die Variationsbreite der Gesteinsfeuchte und des Neutronengifts bestimmt werden. Durch einfachste Rechenoperationen können die gemessenen Zählraten über die bekannten Detektoransprechwahrscheinlichkeiten in die entsprechenden Flußwerte transformiert werden. Für die on-line-Auswertung ist es zweckmäßig, wenn die Zählratenverhältnisse und die thermischen und epithermischen Flußwerte in tabellierter Form gespeichert vorliegen, da sie für die Konzentrationsbestimmung benötigt werden.

Der dritte Schritt der Meßdatenerfassung besteht in der Aufnahme der Gammaskpektren im Bohrloch. Welche Linien im Spektrum für die Konzentrationsbestimmung herangezogen werden und mit welchem Verfahren die Linienintensität am besten ermittelt wird, muß durch eine Probeuntersuchung entweder im Labor oder im Feldversuch selbst vor Beginn der eigentlichen Meßserie entschieden werden. Mit den Linienintensitäten und den Zeitparametern der Messungen in den einzelnen Positionen liegen alle notwendigen Meßdaten vor, mit denen die Datenverarbeitung bis zur Konzentrationsbestimmung durchgeführt werden kann. Das anschließend beschriebene Auswertverfahren hat unmittelbar an die gammaskpektroskopische Messung in der jeweiligen Meßposition zu erfolgen.

b) Konzentrationsbestimmung (Auswertphase)

In der Auswertphase wird der Peakintensität einer γ -Linie die Konzentration des Elements zugeordnet. Auf Grund der einfacheren Datenhandhabung geschieht die Zuordnung in zwei Schritten. Zunächst wird die Teilchendichte N des Elements und daraus dann die Konzentration bestimmt. Die Teilchendichte N ist durch die folgende Beziehung gegeben:

$$N F(m) - A = 0 \qquad 1.6.1$$

A ist dabei eine Größe, die Meßdaten und Nuklearkonstanten enthält. $F(m)$ enthält Meßdaten, Nuklearkonstanten und berechnete Größen, welche den Übergang vom Neutronenflußprofil zur Gammaintensität am Detektorort beschreiben. Demnach ist $F(m)$ eine Funktion der Gesteinsdichte, der Gesteinsfeuchte, der Konzentration der Neutronenabsorber und der Energie der induzierten γ -Strahlung. Hat das nachzuweisende Element keine Resonanzen im Neutroneneinfangquerschnitt, so kann Gleichung 1.6.1 sofort nach N aufgelöst werden. Bei Gegenwart von Resonanzen ist $F(m)$ ebenfalls eine Funktion von N . Dann muß 1.6.1 iterativ gelöst werden. Der Prozeß der Teilchendichteiteration hat eine eindeutige Lösung.

Wenn die Größen $F(m)$ in tabellierter Form zur Verfügung stehen, ist eine on-line Bestimmung der Teilchendichte und damit der Konzentration

möglich. Ziel der weiteren Arbeiten wird es demnach sein, $F(m)$ für verschiedene Lagerstätten-Typen zu berechnen und als Datei für den Auswerteprozess verfügbar zu machen. Beim Feldeinsatz der Neutronenbohrlochsonde hat der Operateur den Lagerstätten-Typ anzugeben. Die Konzentrationsbestimmung läuft dann automatisch ab.

1.7 Anwendbarkeit der Bohrlochsonde für andere Lagerstätten

Das Bohrlochsonden-Experiment in der Scheelitlagerstätte bei Mittersill war von Anfang an nur als eine Demonstration für die Methode aufgefaßt worden. In der aktuellen Lagerstättenprospektion werden außer Wolfram eine Reihe von anderen interessierenden Elementen genannt: Pb, Zn, Ni, Cu, Ba, F, Sn, Ti und andere mehr. Deshalb ist von grundsätzlichem Interesse, wieweit sich die nukleare Bohrlochsondentechnik auch in anderen Lagerstätten einsetzen läßt.

Aus diesem Grund wurde abgeschätzt, welche Elemente nach rein gamma-spektroskopischen Gesichtspunkten für eine Einfanggamma- oder eine Aktivierungsgamma-Analyse geeignet sind. Dabei interessierte für jedes betrachtete Element eine Größe, die unter charakteristischen Voraussetzungen beschreibt, wieviel besser die eine Methode als die andere ist und ferner eine Minimalkonzentration C_{\min} , die mit der besseren Methode unter den gleichen Voraussetzungen noch nachgewiesen werden kann. In die Rechnungen gingen ein: die Neutroneneinfangquerschnitte σ_a , die Isotopenanteile der Elemente, die Gammaintensitäten I_γ und die Halbwertszeiten der durch Neutroneneinfang produzierten Radioisotope. Die Voraussetzungen entsprechen denen in (78): ein Zyklus von $t_1 = 10$ min, $t_2 = 0$ min, $t_3 = 10$ min für Bestrahlung, Warte- und Meßzeit bei der Aktivierungsanalyse (NAA) und eine Gesamtzeit $t = t_1 + t_2 + t_3$ von 20 min für die Einfanggamma-Analyse (NEG). Der geometrischen Benachteiligung der Einfanggamma-Analyse auf Grund der notwendigen Abschirmung zwischen Detektor und Quelle wurde durch einen Faktor $g = 10^{-2}$ für die Intensitäten Rechnung getragen. Als gesamte Probenmasse, die bei der Analyse im Bohrloch erfaßt wird, wurden 10 kg angenommen. Unterschiedliche γ -Absorptionseffekte im Gestein sind nicht berücksichtigt.

Das Ergebnis ist in den Tabellen 3211.4 und 3211.5 dargestellt. Dabei sind die Elemente nach der besseren Nachweiseignung mit der einen oder anderen Methode klassifiziert. Sind beide Methoden gleich gut (NEG/NAA=1), werden die Elemente in beiden Tabellen geführt.

Tab. 3211.4 : Für die Einfanggamma-Analyse geeignete Elemente

Element	Linien-Energie [MeV]	Spezif. Intensität ^{a)} [10 ⁻² b/gramm]	Abgeleitete Größen	
			C _{min} ^{b)} [p/po]	NEG/NAA ^{c)}
Be	6.810	0.04	25	1000
B	0.478	4200	2.4x10 ⁻⁵	1000
Si	4.934	0.24	4.1	1000
P	6.785	0.05	20	1000
S	5.420	0.41	2.4	500
Cl	6.111	8.9	0.1	7
K	5.380	0.24	4.0	8
Ca	6.420	0.18	5.5	1
Ti	6.760	4.1	0.25	1
Cr	8.884	0.86	1.2	40
Fe	7.639 ^D	1.4	0.7	1000
Co	6.877	3.0	0.3	1
Ni	8.999	1.9	0.5	30
Cd	5.824	45	0.02	1000
Ba	4.096	0.09	11	14
Hg	5.967	17.3	0.06	1000
Pb	7.368	0,05	20	1000

Dabei bedeuten:

a) Spezifische Intensität $s = 0.6 I_{\gamma} \sigma_a / A \times 10^{-2}$ mit

I_{γ} [1/s] = Anzahl der emittierten Photonen pro Einfang, σ_a [barn/Atom], A [gramm] = Atomgewicht, der Term $I_{\gamma} \sigma_a / A$ ist auch bekannt unter "analytical sensitivity".

b) $C_{\min} = Pk / (M \cdot \eta \cdot g \cdot s \cdot \Phi)$ mit: Gesamtprobenmasse $M = 10^4$ g
 mittlere untere Peakzählrate $Pk = 0,1$ c/sec,
 Detektorempfindlichkeit $\eta = 10^{-4}$, $\Phi_{th} = 10^6$ n/cm² sec,
 und $g = 10^{-2}$.

c) Einfang/Aktivierung= γ -Peakzählratenverhältnis für Bohrlochgeometrie.

Tab. 3211.5 : Für die Aktivierungsanalyse mit therm. Neutronen geeignete Elemente

Element	Linien-Energie [MeV]		Abgeleitete Größen	
	Zerfall prompt ^{c)}		$C_{\min}^a)$ [$\bar{o}/o_{\bar{o}}$]	NEG/NAA ^{b)}
	1.369			
Na	2.754	6.395	0.5	0.15
Mg	0.844	3.916	1.7	0.1
Al	1.779	7.724	0.04	0.004
Ca	3.08	6.420	5.5	1
Ti	0.320	6.760	0.25	1
V	1.434	6.517	0.003	0.003
Mn	0.847	7.244	0.005	0.008
Co	1.332	6.877	0.3	1
Cu	1.039	7.915	0.1	0.1
Zn	0.439	7.863	5.0	0.6
As	0.559	6.810	0.3	0.03
Mo	1.02	6.919	3.0	0.2
Rh	0.556	5.917	0.01	0.015
Ag	0.658	5.700	0.05	0.025
Sn	0.325	-	15	-
Sb	0.564	6.524	0.8	0.025
W	0.686	6.191	0.7	0.2
Pt	0.543	5.255	0.7	0.1
Au	0.412	6.252	0.04	0.05

a) wie in Tabelle 3211.4, jedoch multipliziert mit NEG/NAA zur Bestimmung der minimalen Konzentration für die NAA.

Dies entspricht $C_{\min} = Pk / (M \cdot \eta \cdot s \cdot \Phi \cdot f)$; $f = (1 - e^{-\lambda t / 2})^2 / \lambda t$.

b) siehe Tabelle 3211.4

c) nur zum Vergleich

Offensichtlich sind nach dieser groben Abschätzung die Voraussetzungen für gammaspektroskopische Untersuchungen für eine Reihe von Elementen erfüllt. Ob diese Bedingungen für einen erfolgreichen Sondeneinsatz auch hinreichend sind, kann erst nach experimenteller Überprüfung der Matrixeinflüsse und der meßtechnischen Gegebenheiten in den Spektren mit Sicherheit festgestellt werden.

Als erster experimenteller Schritt in Richtung auf eine in-situ-Exploration anderer Lagerstätten mit Hilfe der (n, γ) -Methode wurden Mineralseifen aus dem Flachseebereich untersucht. Diese Seifen haben wirtschaftlich interessante Titangehalte. Eine Sandprobe vom Schelfbereich vor Mozambique wurde am thermischen Reaktorneutronenstrahl mit Hilfe einer planaren Ge(Li)-Diode spektroskopiert. Abb. 3211.10 zeigt das gewonnene Impulshöhenspektrum. Die chemische Analyse ergab folgende Materialzusammensetzung: *)

Tab. 3211.6: Materialzusammensetzung einer getrockneten Mineralseifenprobe von dem Küstengebiet vor Mozambique

Material	Gew.-%
SiO ₂	92,0
K ₂ O ²	2,1
Fe ₂ O ₃	1,1
Na ₂ O ³	1,3
Al ₂ O ₃	1,3
TiO ₂	0,75
Cl ²	0,41
Ba	0,23
ZrO ₂	0,23
MgO ²	0,5
P ₂ O ₅	0,2
Mn	0,02
Ca	0,02
V	0,01

Sowie die Spurenelemente
Pb, Nb, Cr, Li, Cu, B, Sr,
Co mit 50 ppm

Die wassergesättigte Probe
enthielt 16,83 Gew.-% Wasser.

*) Die Analyse wurde von der analytischen Gruppe des Instituts für Radiochemie durchgeführt.

Abb. 3211.10 zeigt, daß trotz des hohen Siliziumgehalts die Titanlinien deutlich hervortreten. Leider kann die aus der Einfangreaktion $Ti^{48} + n \rightarrow Ti^{49}$ herrührende Linie bei 6418 keV wegen einer Calciumbeimischung zur Analyse nicht herangezogen werden. Die Titanlinie bei 6760 keV ist jedoch so intensiv, daß auch in Bohrlochgeometrie eine statistische Genauigkeit von 10% in wenigen Minuten erreicht werden kann. Voraussetzung ist, daß sich die Energieauflösung und das Peak-zu-Untergrundverhältnis nicht wesentlich verschlechtern.

2. Technische Entwicklung

R. Wolf, A. Suppan, L. Bösch

2.1 Terrestrische Anwendung

Schwerpunkt der Arbeiten war die Konzipierung und Konstruktion eines Systems, das es gestattet, in den kommenden Jahren eine Reihe von Feldversuchen durchzuführen. Dabei wurde auf den beim Versuch Mittersill (79) gewonnenen Erfahrungen aufgebaut. Dieses System soll bereits die wesentlichen Merkmale technisch einsatzfähiger Geräte besitzen, so daß in den Feldversuchen nicht nur die Ergebnisse der theoretischen Betrachtungen und physikalischen Laboruntersuchungen geprüft und gegebenenfalls modifiziert werden können, sondern auch die Einsatztechnik im Sinne von performancetests geprüft werden kann.

Entsprechend der Aufgabenstellung sind die Grundbausteine des Systems:

- Eine aus einzelnen Modulen aufgebaute Bohrlochsonde (Abb.3211.11).
- Eine Rückkühlanlage (Abb. 3211.12).
- Ein Abschirmbehälter für eine 1 mg Cf-252-Quelle und eine 10 ug Cf-252-Quelle, der auch als Analysenbehälter Verwendung findet (Abb. 3211.13).
- Ein Förderkabel, bestehend aus einem stahldrahtarmierten Koaxialkabel mit PVC-Schutzmantel.
- Ein Fördergerät mit elektrischem Antrieb und Teufenmessung.
- Ein klimatisierter Container nach ISO-Norm für die on-line Datenverarbeitung (Abb. 3211.14).
- Ein Container nach ISO-Norm zum Transport aller für die Feldversuche erforderlichen Geräte (Abb. 3211.14).

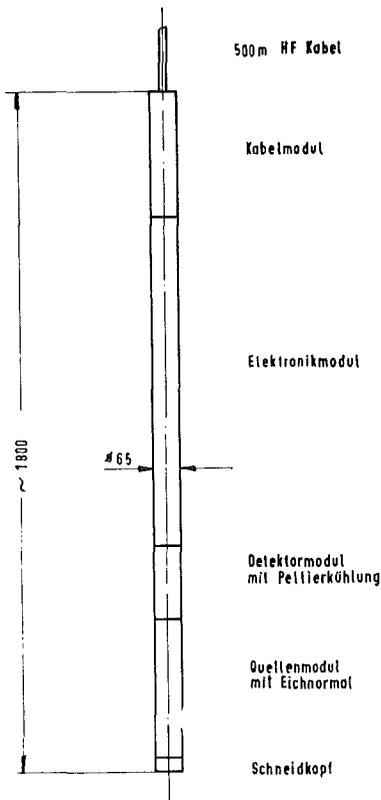


Abb. 3211.11: Bohrlochsonde für Röntgenfluoreszenzanalyse mit Si(Li)-Detektor

Im Berichtszeitraum wurden für dieses System ausschreibungsreife Unterlagen erstellt, eine Ausschreibung durchgeführt und Aufträge für Komponenten vergeben.

Die Möglichkeiten von He-Kälteanlagen mit aufgetrenntem He-Kreislauf zur Kühlung des Feststoff-Kryostaten wurden untersucht, entsprechende Marktstudien und Kostenvergleiche angestellt. Die Unterlagen zeigten, daß ein direkter He-Kühlkreislauf bei den geforderten kleinen Leistungen nur schwer realisiert

werden kann; es wurde daher ein N₂-Kreislauf mit N₂-Kondensierung durch ein He-Aggregat ausgewählt und in Auftrag gegeben (siehe Schema Abb. 3211.12). Die ausgewählte Anlage ermöglicht sowohl die Kondensation von dampfförmig aus dem Kryostat austretenden Stickstoff wie auch - bei Ruhebetrieb - die Kühlung des LN₂-Vorrats oder -bei Stickstoffverlust - die Verflüssigung von Stickstoff aus einer Gasflasche. Die Anlage besteht im wesentlichen aus

- Cryo-Generator, Fabrikat Cryomech, P = 110 W bei 80 K
- Wärmetauscher zur Kondensation von trockenem N₂
- Kondensations-Dewargefäß, 20 l Inhalt, vakuumisoliert
- Vorrats-Dewargefäß, 50 l Inhalt, vakuumisoliert
- div. Heber, Armaturen und Zubehör

Für den Abschirmbehälter sind Konstruktionsarbeiten und Abschirmberechnungen sowie Optimierungsarbeiten durchgeführt worden, die Detailkonstruktion des Behälters ist abgeschlossen.

Der Behälter ist derart ausgelegt, daß sowohl ein sicherer Transport von 2 Cf-252-n-Quellen möglich, wie auch vor Ort ein sicheres Arbeiten am Analysengerät oder mit der Bohrlochsonde gewährleistet ist.

Abb. 3211.13 zeigt die möglichen Einsatzpositionen (I) Transport, (II) Analysenbetrieb und (III) Bohrlochbetrieb.

Beim Transport befinden sich beide Neutronenquellen außerhalb des Zentralkanal in den Lagerpositionen. Beim Analysenbetrieb wird ein Probenbehälter mit dem zu analysierenden Material über den Zentralkanal geschoben; in welchen dann die erforderliche Neutronenquelle eingeführt wird. Zur Aufnahme der Bohrlochsonde mit dem hochauflösenden Gamma-Detektor ist senkrecht zum Zentralkanal in Höhe des Analysenbehälters ein Kanal vorgesehen.

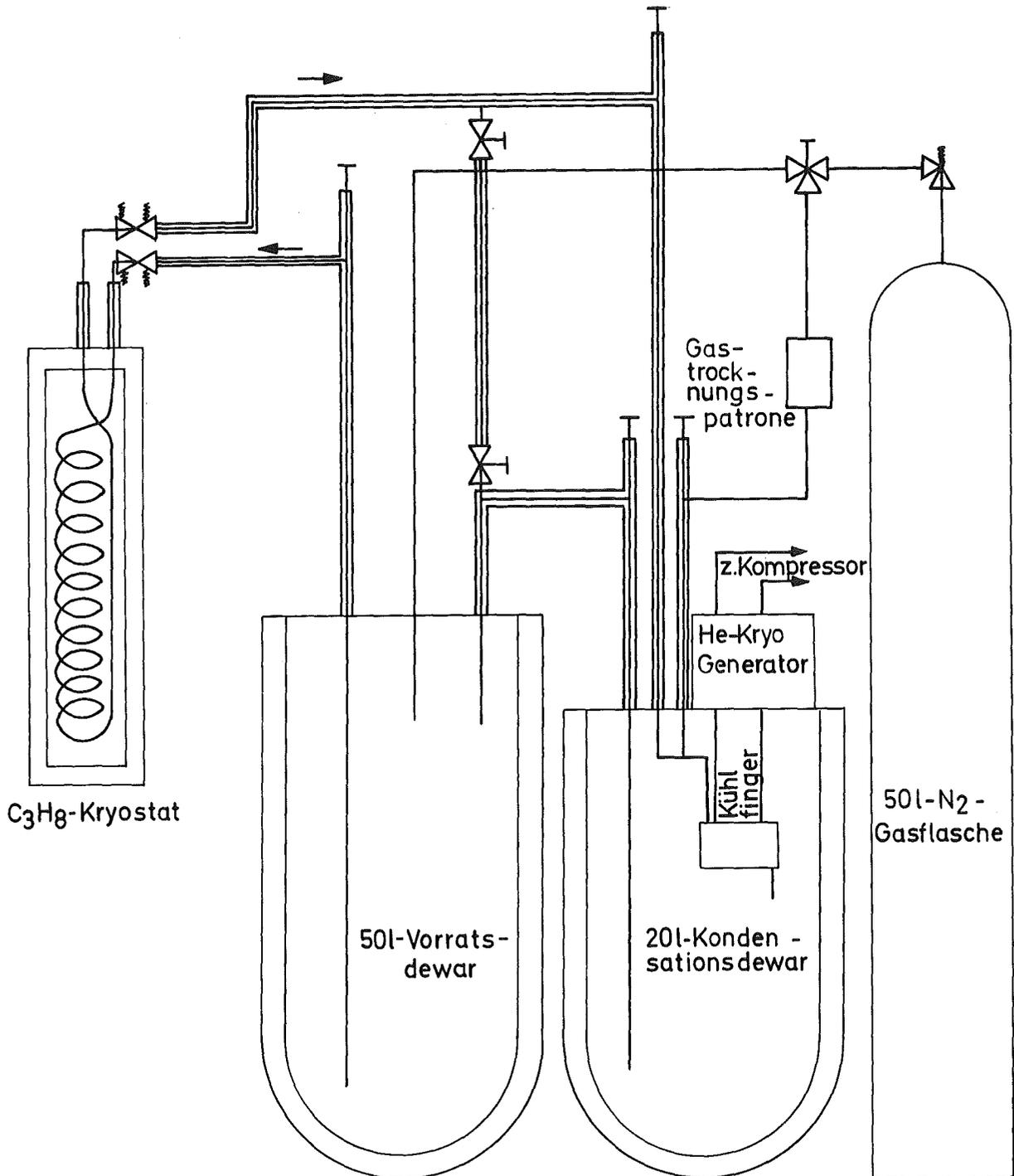


Abb. 3211.12: Schema Rückkühlanlage

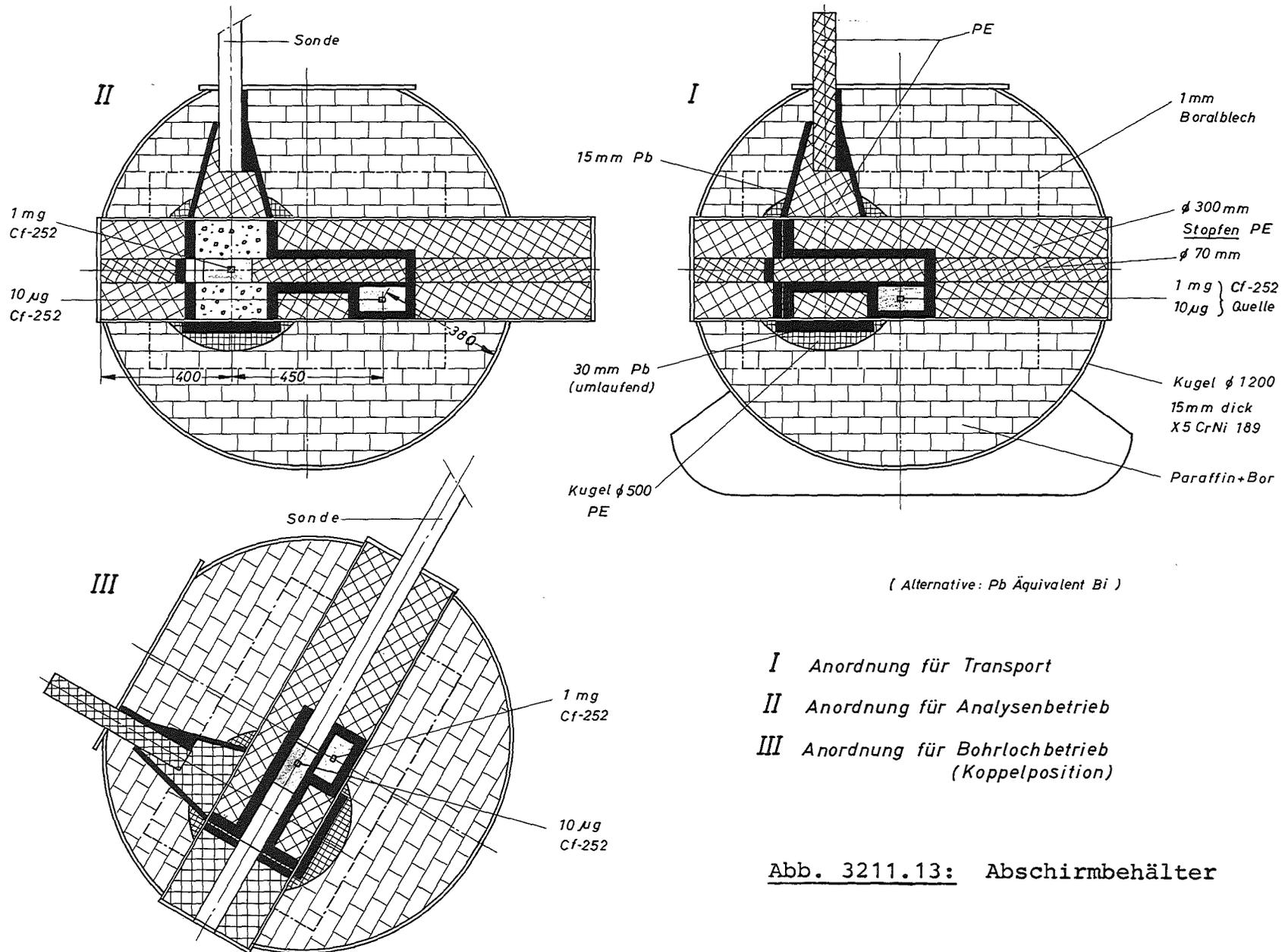


Abb. 3211.13: Abschirmbehälter

Beim Bohrlochbetrieb wird der Abschirmbehälter über dem Bohrloch positioniert, die Sonde in den Zentralkanal eingebracht und die gewünschte Neutronenquelle fernbedient angekoppelt. Alsdann sind Sonde mit angekoppelter Quelle durch den Behälter direkt in das Bohrloch einzufahren. Das Förderkabel konnte auf den kleinen Durchmesser von 11 mm (gegenüber 23 mm beim Mittersill-Kabel) optimiert werden. Ausschreibung, Vergabe und Lieferung des Kabels erfolgte ebenfalls im Berichtszeitraum.

Das Fördergerät ist ausgelegt für einen Kabeldurchmesser von 12,5 mm, eine Kabellänge von 500 m und eine Zugkraft von etwa 230 kg. Die Seilgeschwindigkeit ist von 0,1 bis 10 m/min stufenlos einstellbar und unabhängig von der Seillage. Eine Seillängenmaßeinrichtung mit einer Genauigkeit besser 1% des Meßwertes, digitale Anzeige und entsprechenden Rechneranschluß ist vorgesehen.

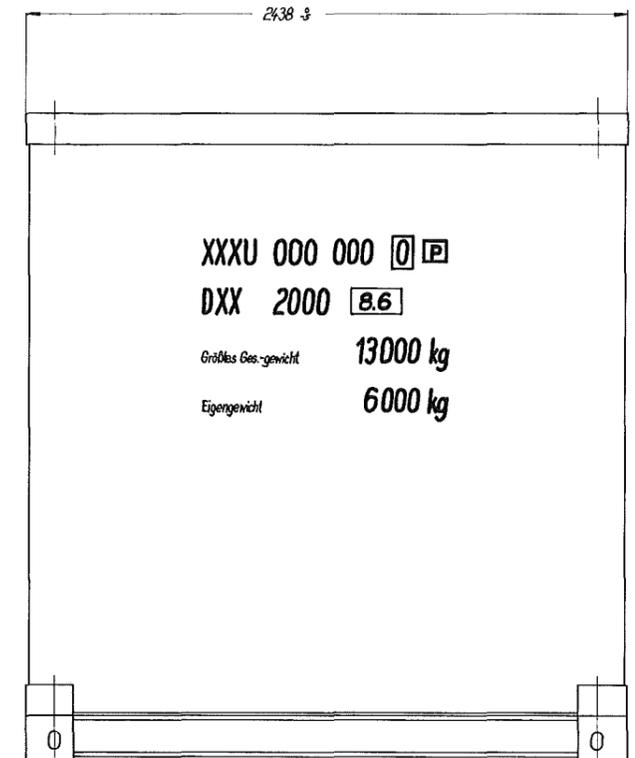
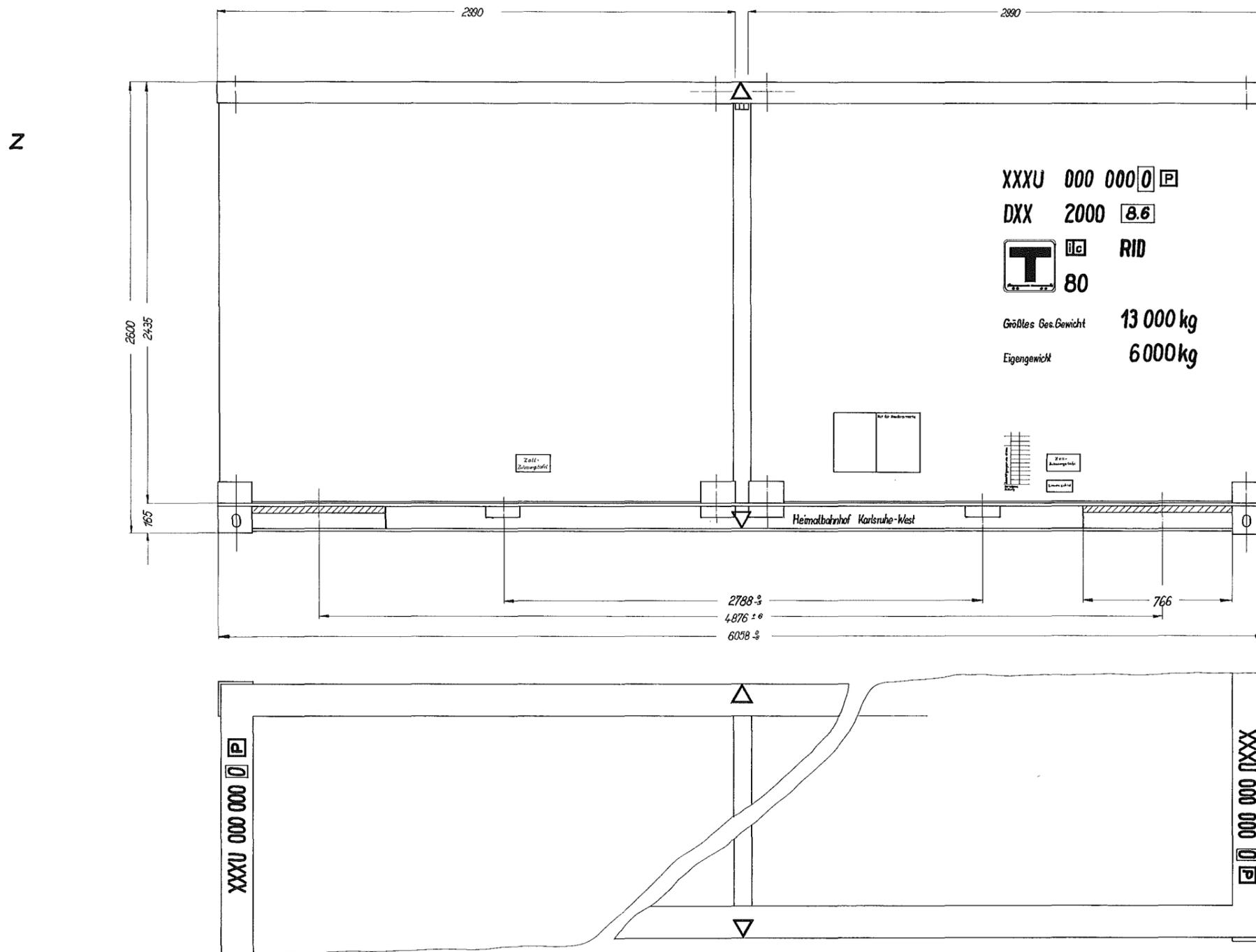
Die Lieferung des klimatisierten "Elektronik"-Containers sowie des "Geräte"-Containers wird Anfang 1974 erwartet. Der Elektronikcontainer beinhaltet die gesamte Datenverarbeitung sowie die Stromversorgung des Systems. Der Gerätecontainer wird zum Transport von schwerem Gerät, wie Abschirmbehälter, Fördergerät, He-Rückkühlanlage etc. benutzt.

Beide Container sind mit hydraulischen Absetzvorrichtungen ausgerüstet, so daß am Einsatzort keine Hebezeuge erforderlich sind.

2.2 Marine Anwendung

Die Arbeiten auf dem Gebiet des marinen Einsatzes von Neutronenbohrlochsonden umfaßten die Fertigstellung einer Laborversuchseinrichtung (80), die Vorbereitungen für den versuchsweisen Einsatz von Bohrgeschäften und die Konzeption des Handlings von marinen Bohrlochsonden (81).

Die 1973 geplante Versuchsanordnung zur Untersuchung der physikalischen Grundlagen bei der marinen Exploration von Mineralseifen wurde gebaut.



Achtung!
Alle Eckbeschläge, deren Öffnungen nicht eingezeichnet sind,
dienen nicht dem bahnmäßigen Umschlag.
Diese Öffnungen sind beim Bahntransport verschlossen.

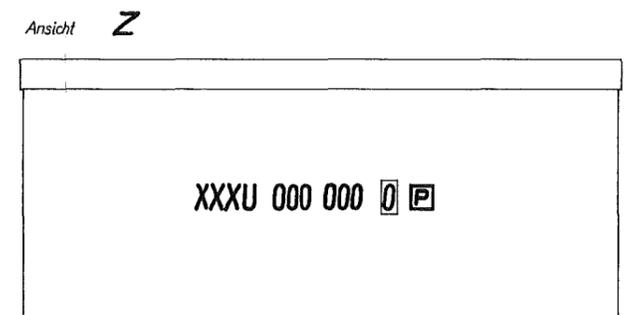


Abb. 3211.14: Container zum Bohrlochanalysensystem

Durch zusätzliche Behältereinsätze und Meßrohre wurde sie dahingehend erweitert, daß die Anordnung nun auch für physikalische Experimente zur terrestrischen Erzexploration geeignet ist.

Für die in-situ-Analyse mittels Neutronenbohrlochsonden sind standfeste Bohrungen im Meeresboden erforderlich, die entweder durch Spülbohren oder Einvibrieren von Rohren hergestellt werden können. In Zusammenarbeit mit der Universität Kiel sind daher für Februar 1974 Versuche in der Ostsee geplant, bei denen mit einem Vibrohammergerät der Hydrowerkstätten Kiel (Abb. 3211.15) Meßrohre in den Meeresboden einvibriert werden. Hierfür wurden im Berichtszeitraum zwei Vibratorrohre mit einer Länge von 6 m und einem Durchmesser von 90 mm gebaut.

Das erarbeitete Konzept zum Handling der Bohrlochsonden bei der Exploration von Mineralseifen sieht eine Anordnung vor, die aus Bohranlage, die nach dem Spülbohrverfahren arbeitet, dem Abschirmbehälter, der entweder ortsfest oder schwenkbar am Grundrahmen des Bohrgerätes montiert ist, zwei an der Mastspitze schwenkbar gelagerten Hubwerken, von denen das eine zum Absenken und Ziehen des Innenbohrers, das andere zum Einbringen der Bohrlochsonde dient, vor. Bei größeren Meerestiefen wird nach dem Niederbringen der Bohrung der Innenbohrer gezogen, die Sonde auf den Abschirmbehälter abgesenkt, der Schieber des Behälters automatisch geöffnet und die Sonde mit der im Behälter befindlichen Neutronenquelle gekuppelt und nach dem Einschwenken der Sonde über das Bohrloch, diese zu Messungen in das Bohrloch abgesenkt. Bei Explorationen im Flachwasser wird die Bohranlage nach dem Bohren mittels der hydraulisch betätigten Stützen angehoben, der Abschirmbehälter über das Bohrloch geschwenkt, und die Sonde nach dem Ankuppeln der Quelle direkt nach unten in das Bohrloch abgesenkt. Durch die Auftriebskörper im Grundrahmen der Bohranlage taucht diese nach Beendigung der Messungen selbsttätig auf und kann zur nächsten Meßposition geschleppt werden. Die Anlage ist während des Betriebes nur durch Stromversorgungs-, Steuerungs- und Datenübertragungskabel mit dem Schiff oder einer schwimmbaren Arbeitsplattform verbunden.

Aufholseil

- 136 -

Kabel

Ablenkrolle

Übertragungs-
einheit für Tiefen-
u. Neigungsanzeige

Vibrator

Gestell

Messerverschluß

~14900

8800

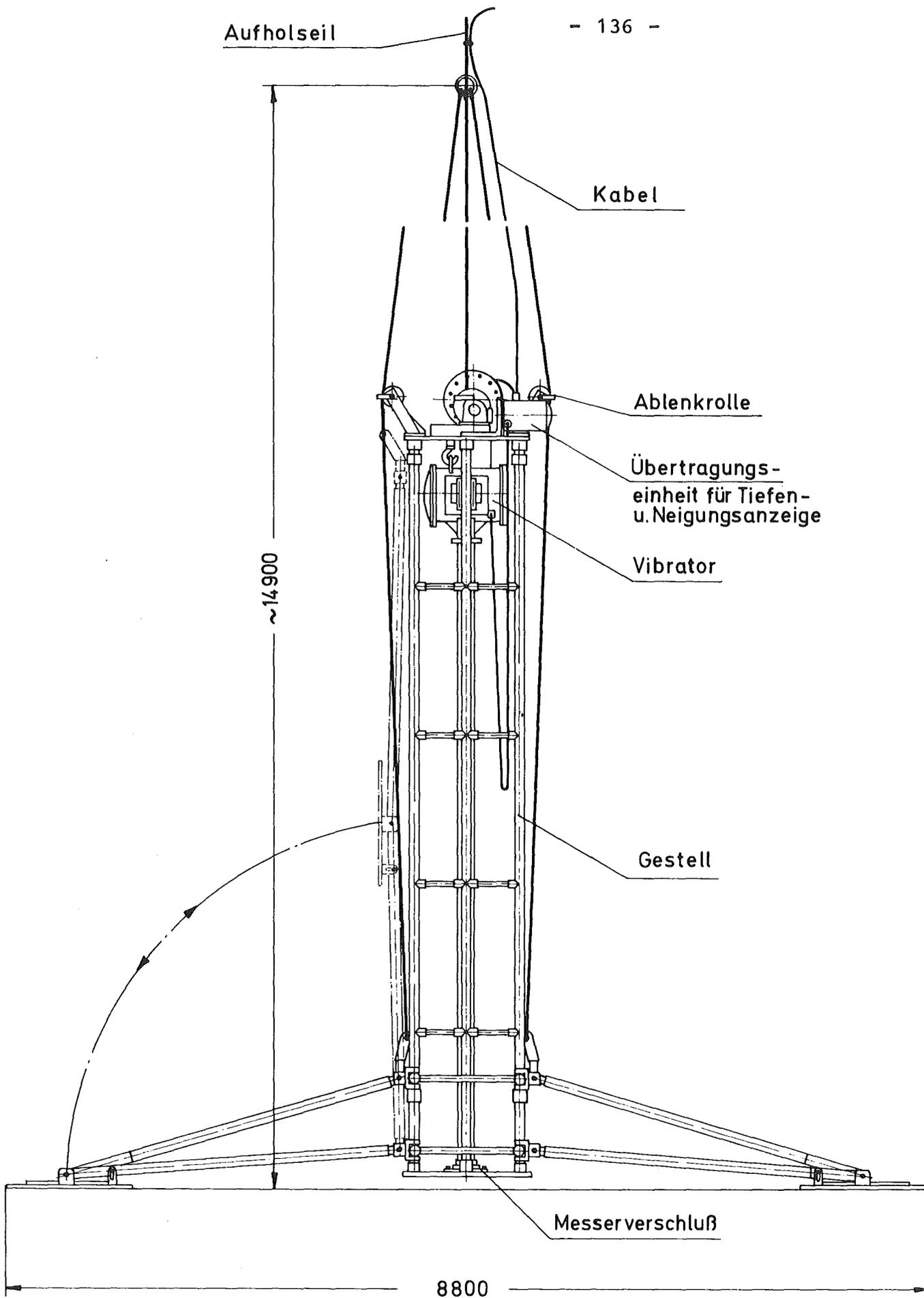


Abb. 3211.15:

Bohraggregat zum Eindringen von Bohrlochsonden im Schelf

3. Wirtschaftlichkeitsbetrachtungen

A. Suppan, L. Bösch

3.1 Einleitung

Die Verwendbarkeit von Analysemethoden und -Geräten hängt neben den erreichbaren Genauigkeiten und bis zum Vorliegen des Ergebnisses erforderlichen Zeitaufwandes wesentlich von den aufzuwendenden Kosten ab. Die im Berichtszeitraum geschaffenen Voraussetzungen (82) sollen eine Kostenanalyse bei Anwendung kerntechnischer und konventioneller Verfahren zur terrestrischen Lagerstättenexploration ermöglichen.

Betrachtet werden die

- konventionelle Methode (Analyse von Bohrkernen)
- Einfanggammaskopie (NEG) als in-situ-Verfahren
- Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) als in-situ-Verfahren bei terrestrischer Anwendung
- Einfanggammaskopie (NEG) als Probenahmeverfahren bei mariner Anwendung

Für einen Kostenvergleich der einzelnen Verfahren ist die Bestimmung der Gesamtkosten je vermessene Bohrung erforderlich. Diese setzen sich aus den Bohr- und Analysenkosten zusammen.

$$K_G = K_B + K_A \quad 3.1.1$$

K_G (DM) = Gesamtkosten je vermessener Bohrung

K_B (DM) = Bohrkosten je Bohrung

K_A (DM) = Analysenkosten

3.2 Terrestrische Anwendung

Die Bohrkosten sind abhängig von

- dem Bohrverfahren
- der Bodenklasse und
- der Bohrtiefe;

Die Analysenkosten sind abhängig von

- der Analysenzeit (Meßzeit), dem Analysenverfahren, den zu bestimmenden Elementen, der Analysengenauigkeit und bei konventionellen Verfahren von der Anzahl der zu analysierenden Elemente.
- der zu vermessenden Bohrtiefe
- der Anzahl der Meßpunkte je Längeneinheit
- den spezifischen Analysenkosten, die sich aus dem Anlagenwert, der Abschreibdauer, den Wartungs- und Instandhaltungskosten, den Personalkosten und der Verfügbarkeit bzw. Nutzung des Systems errechnen.

Die Analysenkosten ergeben sich damit zu

$$K_A = t_{gA} \cdot z \cdot Bt_v \cdot k_A \quad 3.2.1$$

$$K_A = \frac{(\sum \frac{K_{Anl}}{t_{Abschr.}} + \sum K_{Wart} + K_{Pers.}) \cdot 100}{p_v \cdot 365 \cdot 8 \cdot 60} \quad 3.2.2$$

t_{gA} (min) = Gesamtanalysenzeit pro Meßpunkt

z (1/m) = Anzahl der Meßpunkte pro m

Bt_v (m) = zu vermessende Bohrtiefe

k_A (DM/min) = spezifische Analysenkosten

K_{Anl} (DM) = Wert der Systemkomponenten in Abhängigkeit vom Verfahren

$t_{Abschr.}^{(a)}$ = Abschreibungsdauer der Systemkomponenten

K_{Wart} (DM) = Jährliche Wartungs- und Instandhaltungskosten der Systemkomponenten (Verfahrensabhängig)

K_{Pers} (DM) = Jährliche Personalkosten

p_v (%) = Verfügbarkeit des Systems

3.2.1 Konventionelle Methode

Die Analysenkosten setzen sich aus den Kernaufbereitungskosten und der Summe der Kosten für die Analyse der einzelnen Elemente zusammen

$$K_A = (K_{\text{Auf}} + n \cdot K_{\text{EA}}) \cdot Bt_v \cdot z \quad 3.2.1.1$$

K_{Auf} (DM) = Aufbereitungskosten je Probe

K_{EA} (DM) = Analysenkosten je Probe und zu bestimmendes Element

n = Anzahl der zu bestimmenden Elemente

3.2.2 Einfanggammaskopie (Abb. 3211.16)

Zur Ermittlung der Analysenkosten ist neben der Analysenzeit auch die Zeit für die Neutronenflußmessung zu berücksichtigen

$$K_A = t_A \cdot z \cdot Bt_v \cdot k_A \quad 3.2.1.1$$

t_A (min) = Summe der Analysen- und Neutronenflußmeßzeit pro Meßpunkt

3.2.3 Neutronenaktivierungsanalyse (Abb. 3211.17)

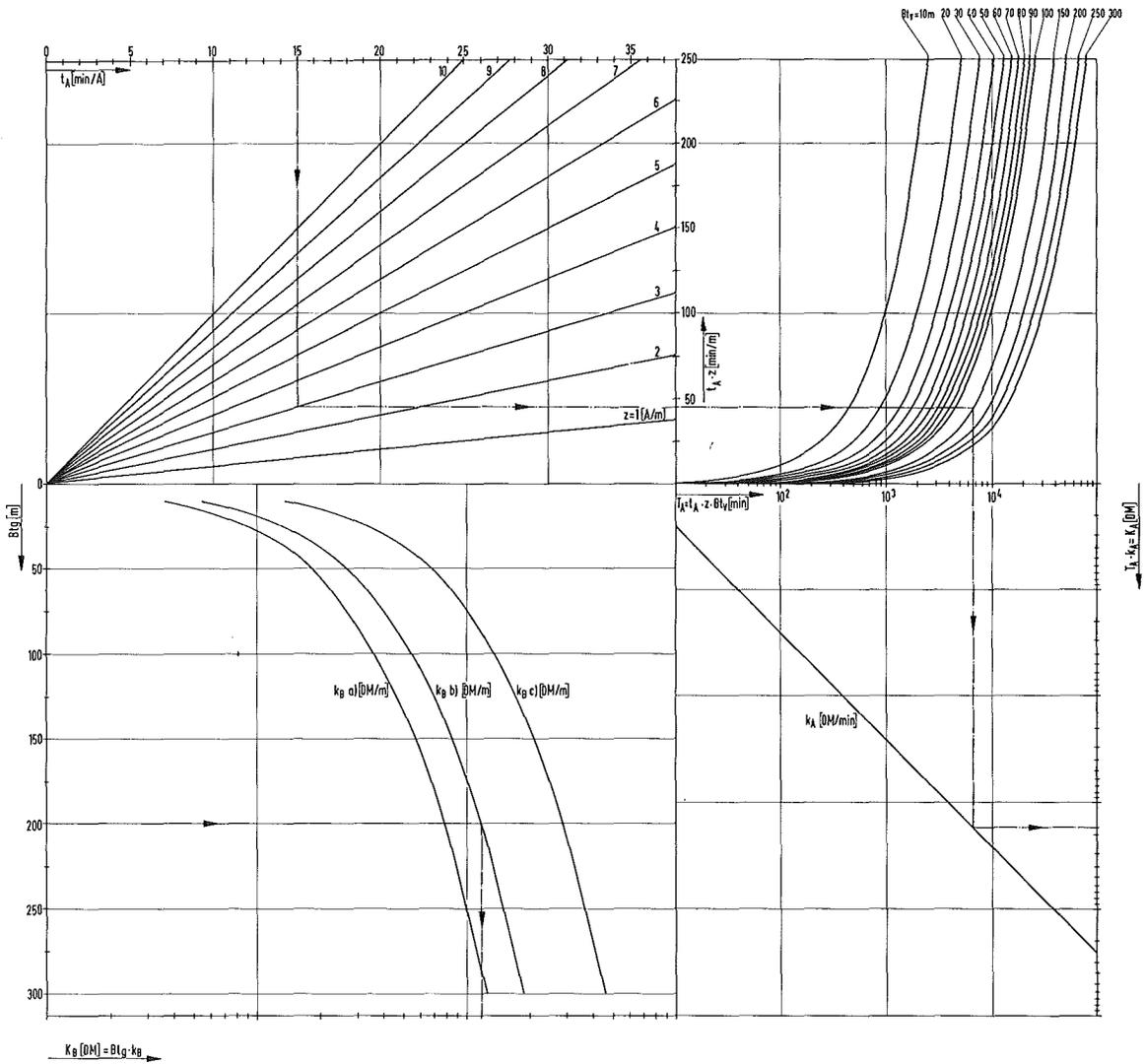
Die für die Analysenkosten maßgebende Gesamtanalysenzeit setzt sich aus der Aktivierungszeit oder der Zeit zur Neutronenflußmessung (je nach dem welche Zeit größer ist), der Abklingzeit und der Meßzeit zusammen. Ist die Abklingzeit größer als die Summe von Aktivierungs- bzw. Neutronenflußmeßzeit plus Meßzeit, so wird die Abklingzeit = 0 gesetzt, da in diesem Fall die Zeit während des Abklingens der Aktivität nicht interessierenden Materials zur Aktivierung an weiteren Meßpositionen genutzt werden kann.

$$K_A = (t + t_{\text{Abkl}} + t_{\text{Mess}}) \cdot z \cdot Bt_v \quad 3.2.3.1$$

t (min) = Aktivierungs- bzw. Neutronenflußmeßzeit pro Meßpunkt

t_{Abkl} (min) = Abklingzeit pro Meßposition

t_{Mess} (min) = Meßzeit der charakteristischen γ -Strahlung pro Meßposition



- a) Lotrechte Bohrung mit Blattmeißel in bindigen Bodenarten, 130mm^ø
- b) Lotrechte Bohrung mit Rollenmeißel in mittelharten Bodenarten (bis Bodenklasse 2.27 DIN 18300), 130mm^ø
- c) Lotrechte Bohrung mit Kerngewinn in Fels (Bodenklasse 2.28 DIN 18300), 76mm^ø

Abb. 3211.16: Ermittlung der Kosten der in-situ-Analyse in Bohrlöchern mittels Empfanggamma-Spektroskopie

3.3 Marine Anwendung

Die Neutronenaktivierungsanalyse wird für die marine Anwendung nicht in Betracht gezogen, da bei größeren Abklingzeiten (>30 min) die erforderliche Verrohrung Schwierigkeiten im Handling mit sich bringt.

3.3.1 Konventionelle Methode

Die Gesamtkosten sind

$$K_G = K_B, \text{ wenn } T_B > T_A \quad 3.3.1.1$$

$$K_G = K_{AS}, \text{ wenn } T_B < T_A \quad 1) \quad 3.3.1.2$$

$$K_G = K_B + K_{AL}, \text{ wenn } T_B < T_A \quad 2) \quad 3.3.1.3$$

Es bedeuten

K_G (DM) = Gesamtkosten je vermessener Bohrung

K_B (DM) = Bohrkosten je Bohrung

K_{AS} (DM) = Analysenkosten pro vermessender Bohrung, wenn alle Analysen vor Ort durchgeführt werden

K_{AL} (DM) = Analysenkosten an Land

T_B (h) = Gesamtbohrzeit

T_A (h) = Analysenzeit pro vermessener Bohrung

1) alle Analysen aber trotzdem vor Ort durchgeführt werden

2) jedoch die Analysen teils vor Ort, teils an Land durchgeführt werden.

Im marinen Bereich bedürfen die Bohrkosten, im Gegensatz zum terrestrischen Bereich, einer gesonderten Betrachtung. Die Bohrkosten errechnen sich wie folgt:

$$K_B = T_B \cdot k_B \quad 3.3.1.4$$

$$T_B = t_B \cdot B_t + T_G + \frac{Bt}{6} \cdot t_K \quad 3.3.1.5$$

Es bedeuten

- k_B (DM/h) = spezifische Bohrkosten
- t_B (h/m) = spezifische Bohrzeit (abhängig von der Bodenbeschaffenheit)
- Bt (m) = Bohrtiefe
- T_G (h) = Grundzeit, zusammengesetzt aus der Vorbereitungszeit zum Bohren, der Zeit zum Hieven der Anlage und der Zeit zum Ansteuern der nächsten Bohrsposition.
- t_K (h) = Zeit zum Ziehen eines Kernes
- Bt/6 (-) = Anzahl der Kerne über die gesamte Bohrtiefe, bei einer Kernlänge von 6 m. Der Wert wird aufgerundet.

Die Analysenkosten sind abhängig von

- der Anzahl der zu analysierenden Elemente
- der Zeit pro Analyse
- der Anzahl von Analysen pro Längeneinheit
- der Bohrtiefe
- der spezifischen Analysenkosten vor Ort und/oder an Land

Sie ergeben sich damit zu

$$K_{AS} = T_A \cdot k_{AS} \quad 3.3.1.6$$

$$T_A = t_A \cdot z \cdot Bt \quad 3.3.1.7$$

$$K_{AL} = (T_B - T_A) \cdot k_{AL} \quad 3.3.1.8$$

Es bedeuten

- t_A (h) = Zeit pro Analyse in Abhängigkeit von der Anzahl der zu analysierenden Elemente
- Z (1/m) = Anzahl der Analysen pro Meter vermessener Bohrung
- k_{AS} (DM/h) = spezifische Analysenkosten vor Ort
- k_{AL} (DM/h) = spezifische Analysenkosten an Land

3.3.2 Einfanggammaskopie als in-situ Verfahren

(Abb. 3211.18)

Die Gesamtkosten je vermessener Bohrung ergeben sich aus

$$K_G = K_{AS} + K_B \quad 3.3.2.1$$

$$K_{AS} = t_A \cdot z \cdot Bt \cdot k_{AS} \quad 3.3.2.2$$

$$K_B = (T_G + t_B \cdot Bt) \cdot k_B \quad 3.3.2.3$$

Die spezifischen Analysenkosten errechnen sich aus:

$$k_{Al} = \frac{(\sum \frac{K_{Anl}}{t_{Abschr}} + \sum K_{Wart} + K_S + K_{Pers.S.}) \cdot 100}{p_V \cdot 365 \cdot 24} \quad 3.3.2.4$$

$$K_{Al} = \left[\frac{DM}{h} \right] = \frac{(\sum \frac{K_{Anl}}{t_{Abschr}} + \sum K_{Wart} + K_{Pers.L.}) \cdot 100}{p_V \cdot 365 \cdot 8} \quad 3.3.2.5$$

Hierin bedeuten:

- $K_{Anl} \left[\frac{DM}{\bar{h}} \right]$ = Wert der Systemkomponenten in Abhängigkeit vom Verfahren.
- $t_{Abschr} \left[\frac{\bar{a}}{\bar{h}} \right]$ = Abschreibungsdauer der Systemkomponenten
- $K_{Wart} \left[\frac{DM}{a} \right]$ = Jährliche Wartungs- und Instandhaltungskosten der Systemkomponenten (Verfahrensabhängig)
- $K_S \left[\frac{DM}{a} \right]$ = Jährliche Schiffskosten
- $K_{Pers.S.} \left[\frac{DM}{a} \right]$ = Jährliche Personalkosten beim Einsatz an Bord
- $K_{Pers.L.} \left[\frac{DM}{a} \right]$ = Jährliche Personalkosten beim Einsatz an Land
- $p_V \left[\% \right]$ = Verfügbarkeit des Systems

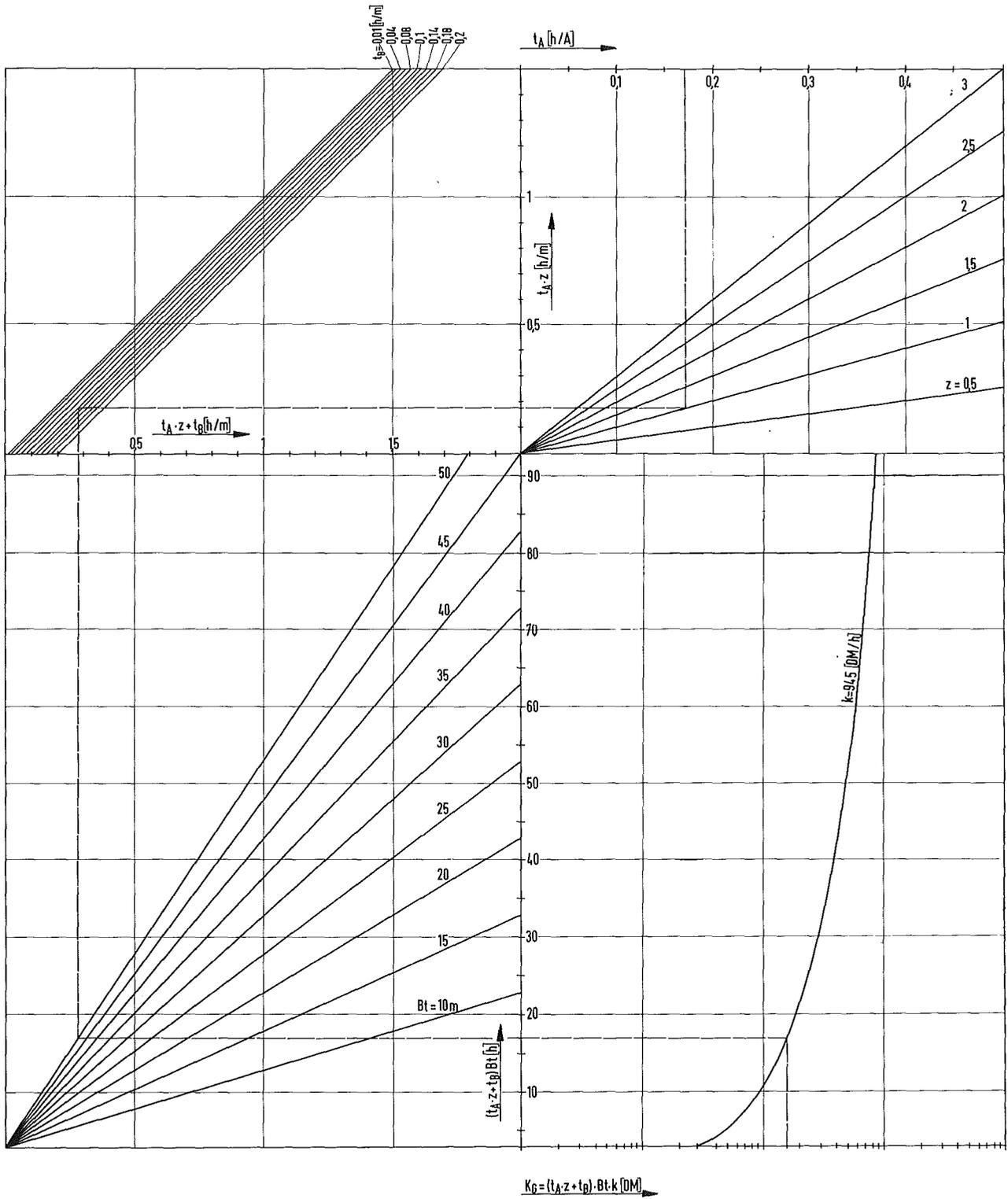


Abb. 3211.18: Ermittlung der Kosten der in-situ-Analyse in Bohrlöchern im Schelf

3.3.3 Einfanggammaskopie als Probenahmeverfahren
(Abb. 3211.19)

Die Kostenrechnung erfolgt wie unter Punkt 3.3.1 jedoch ist hierbei die Analysenzeit (t_A) zwar elementabhängig, aber unabhängig von der Anzahl der zu explorierenden Elemente.

$$K_B = T_B \cdot k_B \quad 3.3.3.1$$

$$T_B = T_G + t_g \cdot Bt \quad 3.3.3.2$$

$$K_{AS} = T_A \cdot k_{AS} \quad 3.3.3.3.$$

$$K_{AL} = (T_B - T_A) \cdot k_{AL} \quad 3.3.3.4$$

$$K_G = K_B, \text{ wenn } T_B > T_A \quad 3.3.3.5$$

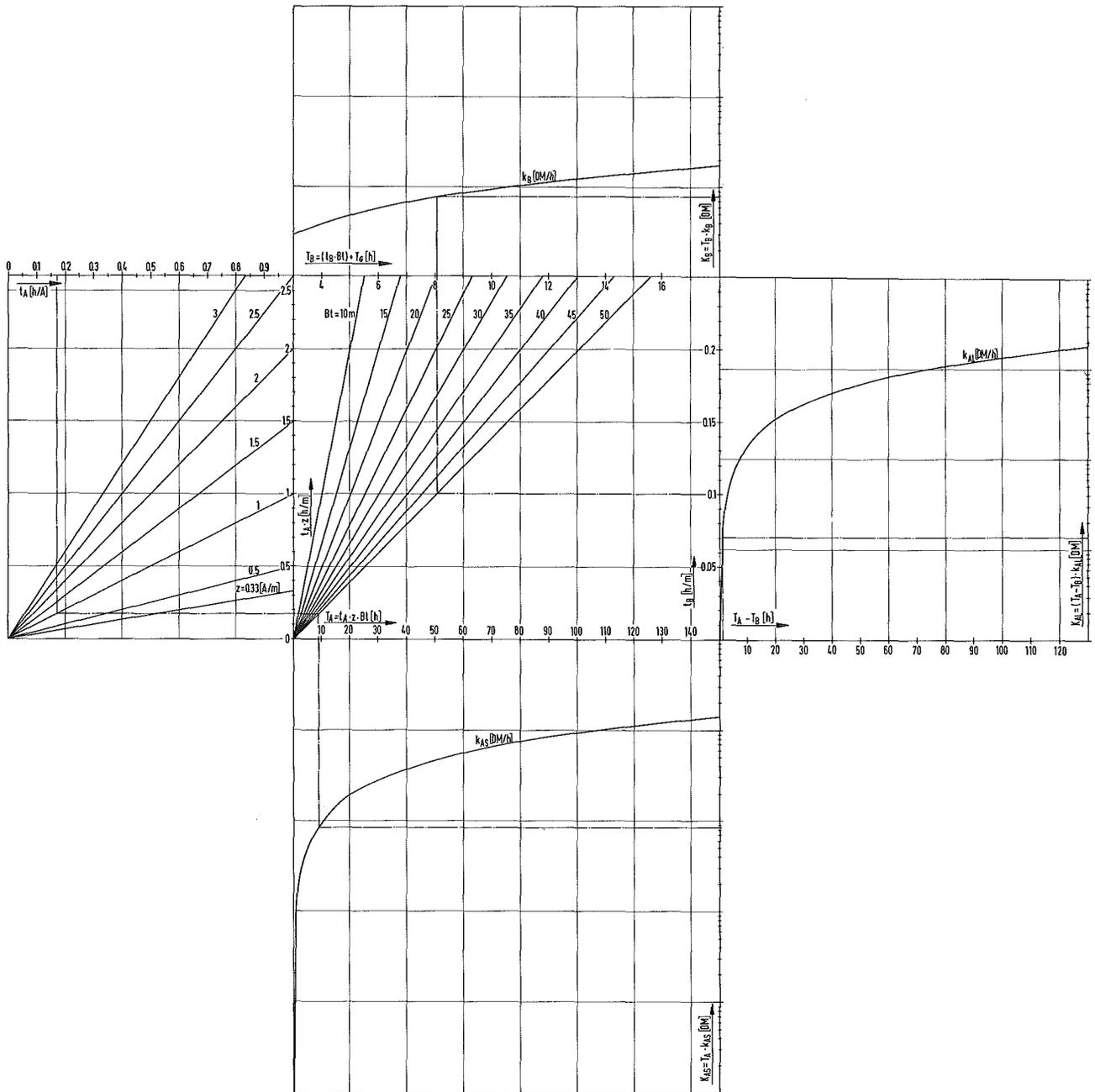
$$K_G = K_{AS}, \text{ wenn } T_B < T_A, \quad 1) \quad 3.3.3.6$$

$$K_G = K_B + K_{AL}, \text{ wenn } T_B < T_A, \quad 2) \quad 3.3.3.7$$

Die spezifischen Analysenkosten für alle Verfahren errechnen sich aus den Formeln 3.3.2.4 und 3.3.2.5.

1) alle Analysen vor Ort durchgeführt

2) die Analysen teils vor Ort, teils an Land durchgeführt



Desamtkosten K_G .

$K_G = K_B$ wenn $T_B > T_A$

$K_G = K_{AS}$ wenn $T_A > T_B$ und alle Analysen vor Ort durchgeführt werden.

$K_G = K_B + K_{AL}$ wenn $T_A > T_B$ und Analysen teils vor Ort und teils an Land durchgeführt werden.

Abb. 3211.19: Ermittlung der Kosten von Explorationsen im Schelf nach dem Probenahmeverfahren

3211.2 RÖNTGENFLUORESZENZ - BOHRLOCHSONDE

A.Lubecki, J. Schmitz, R. Döbele, R. Wolf

Ziel dieses Vorhabens ist, mit Hilfe der nichtdispersiven Röntgenfluoreszenzanalyse In-situ Analysen in Bohrlöchern durchzuführen. Neben der methodischen Entwicklung des Meßverfahrens, zunächst für schwere Elemente, später für mittelschwere Elemente, ist die Entwicklung geeigneter Sondensysteme mit on-line Auswertung von besonderer Wichtigkeit.

Das Programm für 1973 sah vor, die physikalischen und meßtechnischen Grundlagen für die Weiterentwicklung der Röntgenfluoreszenzanalyse zu einer absoluten Meßmethode zu erarbeiten. Weiter sollte eine verbesserte Versuchssonde mit entsprechender on-line Auswertung erstellt werden.

1. Absolutbestimmung mit der Röntgenfluoreszenzmethode

Nach Durchführung der Versuche in Mittersill wurden die methodischen Untersuchungen zur Wolfram-Bestimmung in Erzen mittels radionuklidangeregter Röntgenfluoreszenzanalyse weiter fortgesetzt. Besonders wurde die Problematik einer geeigneten absoluten Standardisierungsmethode für verschiedene Meßgeometrien studiert.

Theoretische Betrachtungen zur Röntgenfluoreszenzanalyse, die bereits in früheren Berichten (83..86) niedergelegt sind, liefern nur qualitative Informationen über die absolute Intensität der Röntgenfluoreszenzstrahlung. Die bei der Auswertung des Mittersill-Experiments entwickelte Formel

$$I_{fD} = \frac{K' \cdot C}{q + (1-q) \cdot C} \quad 1.1$$

enthält in der Konstante K' experimentell zu bestimmende Einzelparameter. Die in der Praxis vorliegenden Meßbedingungen dafür im Labor zu simulieren, bringt vor allem für die Bohrlochgeometrie Schwierigkeiten. Relativ große Mengen eines Standardmaterials werden benötigt, um eine experimentelle Eichkurve zu erhalten und die optimalen Ana-

lysenbedingungen festzustellen.

Um von diesen experimentellen Schwierigkeiten unabhängig zu werden, wurden die theoretischen Betrachtungen weiter fortgeführt und schließlich für die Intensität "I_f" der Röntgenfluoreszenzstrahlung folgende allgemeine Formel entwickelt:

$$I_f = K A C \rho \int_V att(E_0) \int_{S_1} att_1(E_f) \cdot \epsilon_1 ds_1 + \int_{S_2} att_2(E_f) \cdot \epsilon_2 ds_2 \quad dV$$

1.2

In dieser Formel bedeuten:

- K - eine Konstante, die von grundsätzlichen Parametern, wie z.B. der Fluoreszenzausbeute abhängt
- A - die Zahl der Anregungs- γ -Quanten der Primärstrahlenpunktquelle
- C - den Gewichtsanteil des zu bestimmenden Elements
- ρ - die Dichte der Probe
- $att(E_0)$,
 $att_1(E_f)$,
 $att_2(E_f)$ - Ausdrücke, die die Schwächung der Primärstrahlung von der Quelle zum Punkt der Anregung bzw. die Schwächung der Röntgenfluoreszenzstrahlung vom Punkt der Anregung zum Detektor beschreiben
- V - das Probenvolumen, aus dem die Röntgenfluoreszenzstrahlung den Detektor erreicht
- S_1, S_2 - die zwei wirksamen Oberflächen eines zylindrischen Detektors
- ϵ_1, ϵ_2 - die richtungsabhängige Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors.

Auch für relativ einfache Geometrien kann obige Formel 1.2 in analytischer Weise nicht gelöst werden, da die Ausdrücke für die Strahlungsschwächung und die Detektoransprehwahrscheinlichkeit sehr komplex sind. Numerische Methoden, die zur Lösung einzelner Integrale entwickelt wurden, versagen bei der Lösung von Mehrfachintegralen (87,88). Zur näherungsweisen Lösung wurde daher die einfache Monte-Carlo-Methode (89) angewendet.

Drei verschiedene Geometrie-Bedingungen wurden in Betracht gezogen (Ref. 4, Abb. 6,7 u. 8):

- einfache Kompaktgeometrie
- Kompaktgeometrie mit Strahlenkollimierung
- Bohrlochgeometrie

Die für diese Berechnungen notwendigen Rechenprogramme (ALGOL) wurden für die IBM/360 - 65 und 370 - 165 erstellt.

Als Beispiel für den Vergleich experimenteller und theoretischer Werte sind die Ergebnisse für einen Si(Li)-Detektor und Kompaktgeometrie in Abb. 3211.20 zusammengefaßt. Dabei wurden für den Untergrundabzug der gemessenen Spektren drei verschiedene Methoden angewandt (im Diagramm eingetragene Meßwerte). Die theoretisch berechnete Kurve paßt sehr gut - innerhalb der Fehlergrenze - in diese Meßwerte. Ähnlich gute Ergebnisse wurden für einen Ge(Li)-Detektor und Kompaktgeometrie mit Strahlenkollimierung erhalten.

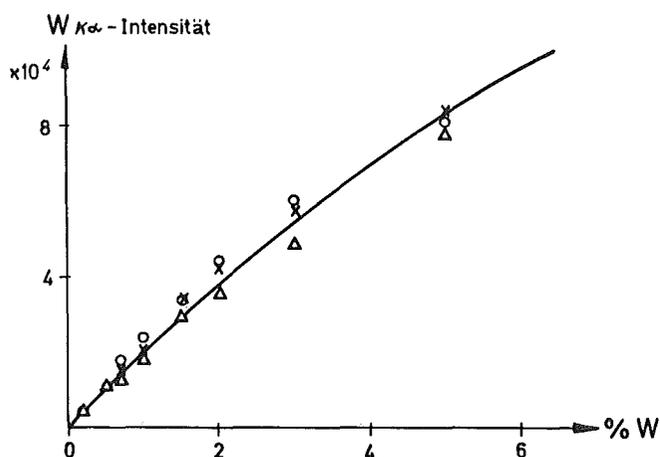


Abb. 3211.20

Vergleich experimenteller und theoretischer Werte für Si(Li)-Detektor und Kompaktgeometrie.

2. Beschreibung der Bohrlochsonde

Die Röntgenfluoreszenz-Bohrlochsonde (RFA-BLS) soll zur Prospektierung und Explorierung von Erzen eingesetzt werden. Sie wird unter erschwerenden Bedingungen in schwerzugänglichem Gelände arbeiten müssen (u.a. Schrägbohrungen über- und untertage, 500 m-Bohrungen vollständig unter Wasser, im Schelfgebiet in Seewasser) und ist entsprechend ausgelegt.

Als Anregungsquelle dient eine gekapselte Gamma-Quelle, die für jedes Meßproblem optimal anzupassen ist und erst vor Ort jeweils in die RFA-BLS eingesetzt wird.⁺⁾ Als Detektor ist ein Silizium-Dünnschicht-Halbleiter eingebaut, der durch Peltier-Elemente gekühlt wird.⁺⁺⁾ Die Datenauswertung erfolgt übertage mit einem 24 K Rechner, der als Vielkanalanalysator und Computer eingesetzt ist. An ihn sind als Peripherie-Geräte eine Teletype, Lochstreifenleser und Stanzer angeschlossen. Zum Bewegen der BLS im Bohrloch ist ein Fördergerät vorgesehen, welches im Sommer 1974 zum Einsatz kommt. Mit der Winde ist eine Teufenmeßeinrichtung gekoppelt.

In Abb. 3211.21 ist das Blockschaltbild der Meßanordnung dargestellt.

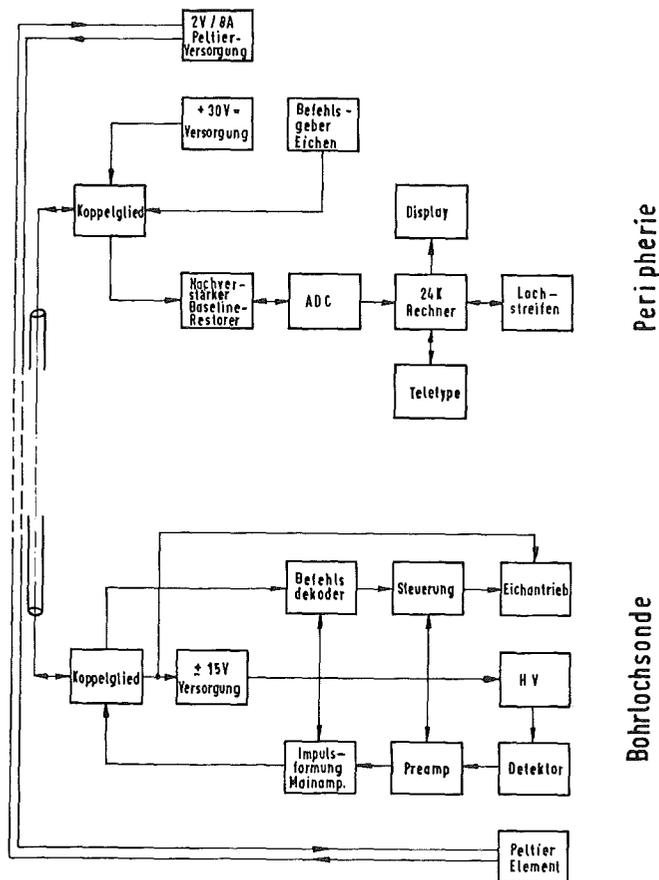


Abb. 3211.21:

Blockschaltbild der Messordnung

+) (90)

++) (91)

Abb. 3211.23 zeigt den Aufbau der Sonde.

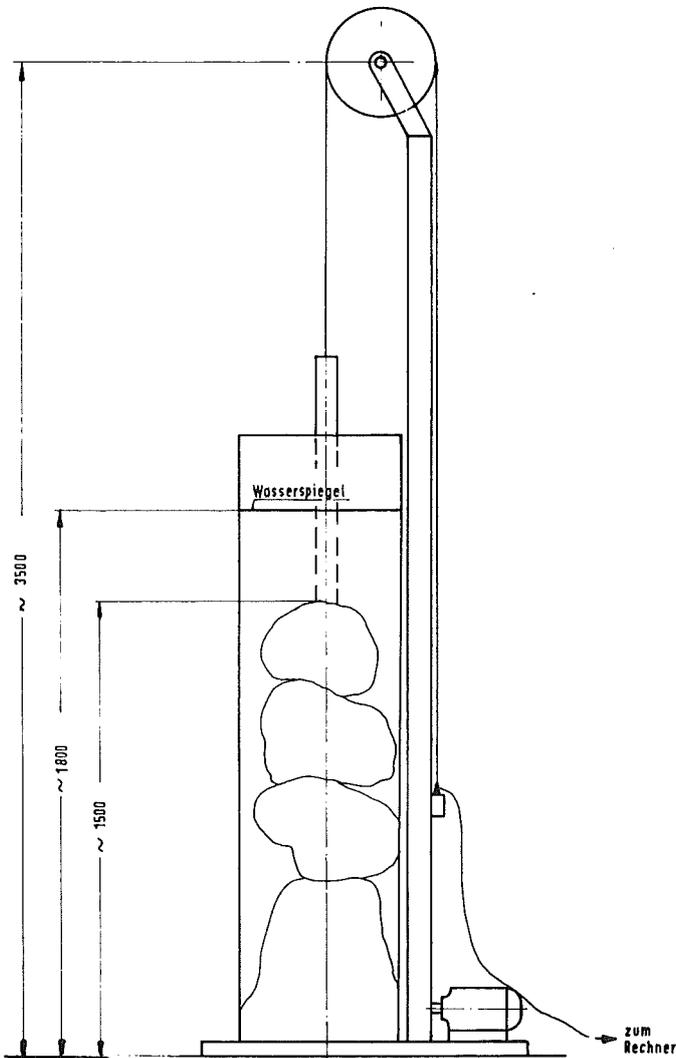


Abb. 3211.23

Bohrlochmodell

3. Erprobung der Sonde

3.1 Bohrlochmodell

Um für Labortests und auf Ausstellungen realistische Versuchsbedingungen zu schaffen, wurde ein Bohrlochmodell erstellt (Abb.3211.23).

Es besteht im wesentlichen aus

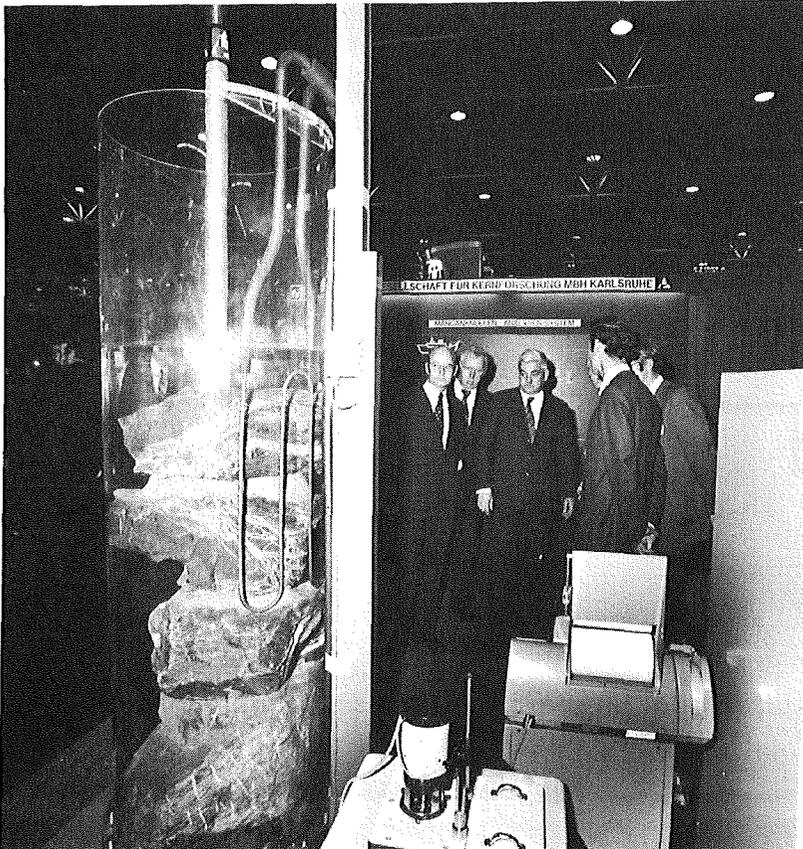
- Antriebseinheit
- Mast mit Umlenkrolle
- Steinsäule mit Bohrung
- Plexiglasrohr als Wasserbehälter.

Das Modell stellt eine unter Wasser gehende 1,5 m lange Bohrung im Scheelit-Gestein dar, in der die BLS auf- und abgefahren werden kann. Als Steinsäule wurde Originalgestein aus dem Scheelit-Vorkommen Mittersill verwendet; der Bohrungsdurchmesser beträgt wie im Feld 75 - 80 mm. Die W-Konzentration im Stein schwankt zwischen 0 und 7%.

3.2 Ergebnis der Testläufe

Die Messungen wurden in dem in 3.1 beschriebenen Bohrloch durchgeführt. Die Sonde wurde kontinuierlich mit 5 cm/min auf- und abbewegt, währenddessen die Spektren gemessen und ausgewertet wurden. Die Meßzeit für ein Spektrum betrug 61 sec. Auf Grund der vorliegenden Bohrlochgeometrie und der geometrischen Anordnung von Quelle-Abschirmung-Detektor und der eingestellten Meßzeit erfaßte eine Messung einen ca. 12cm Abschnitt des Bohrlochs. Die Berechnungen schlossen sich unmittelbar an die Meßzeit an und dauerten ca. 30 sec. Während dieser Zeit ging also praktisch keine Information über das Konzentrationsprofil des Bohrlochs verloren, da sich die ausgemessenen Zonen überlappten.

Die momentan mögliche Form des Ergebnisausdrucks ist in Tab. 3211.4 dargestellt. Zum besseren Verständnis wurden die Meßpunkte zu einem



Histogramm verbunden und auf der rechten Seite die zugehörige Sondenposition angegeben.

Tab. 3211.5 zeigt die Ergebnisse mehrerer Testläufe in dem 1,5 m Bohrloch. Daraus ist ersichtlich, daß die Reproduzierbarkeit zwischen den einzelnen Testläufen sehr gut war.

Abb. 3211.24:

Stand der GfK auf der Inter-ocean 73 (links im Bild das Bohrlochexperiment)

61 62
 J=6704.30 +-464.6 UG.=104586
 WOLFRAM KONZENTRATION=(0.699 +- 0.052)%
 NAECHSTES SPEKTRUM

61 62
 J=4992.32 +-464.8 UG.=105527
 WOLFRAM KONZENTRATION=(0.509 +- 0.050)%
 NAECHSTES SPEKTRUM

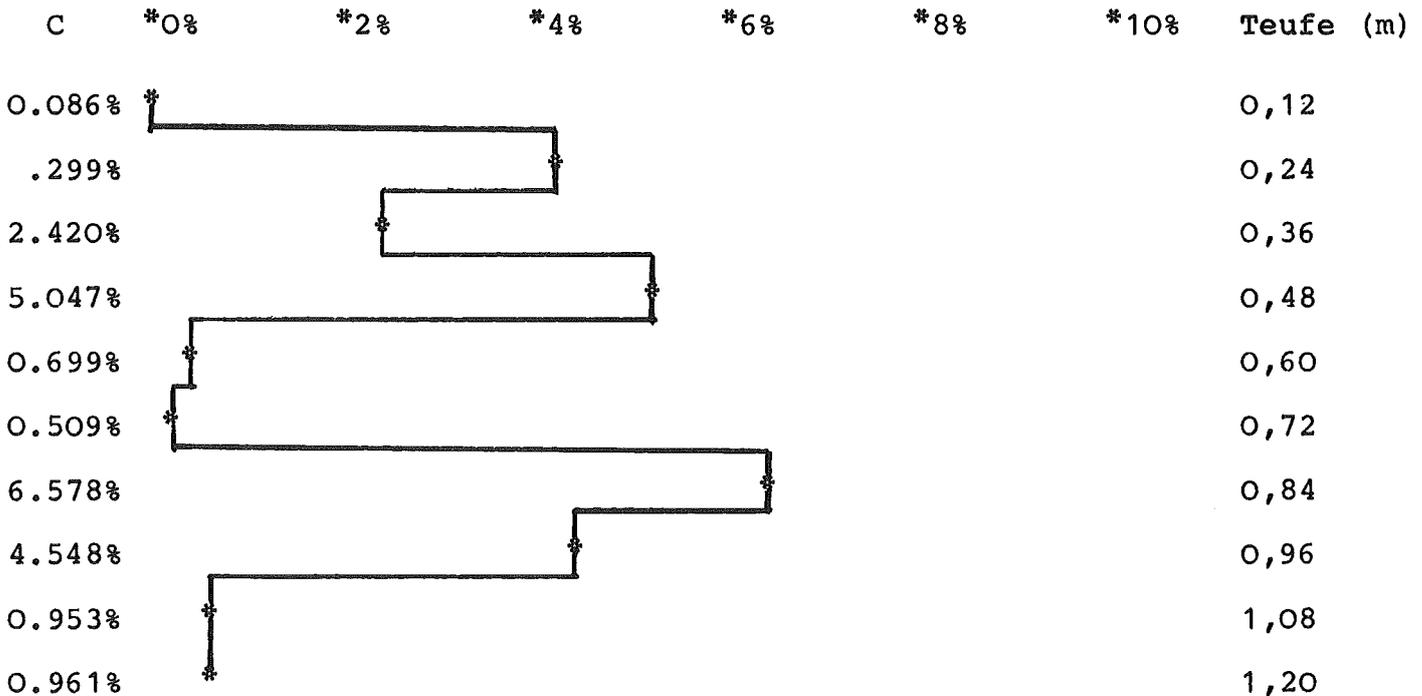
61 62
 J=37827.9 +-467.9 UG.=90593.
 WOLFRAM KONZENTRATION=(6.578 +- 0.164)%
 NAECHSTES SPEKTRUM

61 62
 J=30351.2 +-473.6 UG.=97018
 WOLFRAM KONZENTRATION=(4.548 +- 0.119)%
 NAECHSTES SPEKTRUM

61 62
 J=8955.53 +-503.0 UG.=122046
 WOLFRAM KONZENTRATION=(0.961 +- 0.060)%

10 SPEKTREN

WOLFRAM-KONZENTRATIONSPROFIL DES BOHRLOCHS



Tab. 3211.4: Ausgabe der Ergebnisse Konzentration in Abhängigkeit von der Teufe

Tab. 3211.5: W-Konzentration in versch. Teufen bei mehreren Durchgängen

Teufe (m)	Testläufe				
	1	2	3	4	5
0,12	0,183	0,193	0,158	0,097	0,103
0,24	4,507	4,632	4,302	4,450	4,307
0,36	2,555	2,694	2,686	2,332	2,391
0,48	5,005	5,033	4,920	4,751	5,160
0,60	0,716	0,770	0,773	0,773	0,645
0,72	0,747	0,738	0,790	0,713	0,647
0,84	6,459	6,566	6,826	7,148	6,767
0,96	4,603	4,417	4,372	4,457	4,381
1,08	1,210	1,164	1,068	1,050	1,129
1,20	0,995	0,980	1,121	1,004	0,859

3.3. Ausstellung der Sonde auf der Interoccean 73

Die Bohrlochsonde wurde auf der "Interoccean" im November 1973 in Düsseldorf ausgestellt (Abb. 3211.24) und fand reges Interesse bei der Fachwelt. Während der 5 Ausstellungstage lief die Sonde in kontinuierlichem Betrieb in dem wassergefüllten 1,5 m Bohrloch auf und ab und bestand damit ihren ersten Dauertest unter erschwerten Bedingungen.

Die damit erhaltenen Meßwerte gaben einen guten Anhaltswert über die Reproduzierbarkeit der Meßergebnisse. Auf Grund des hier gewonnenen Erfahrungsaustausches mit anderen Fachleuten werden weitere Verbesserungen z.B. in der Datenausgabe (Peripherie) vorgenommen.

4. Weiterentwicklung

4.1 Fördergerät und Bohrlochsonde

Das Fördergerät zur Sondenbewegung im Bohrloch wurde im Januar 1974 bestellt. Vorgesehen ist eine vorwählbare Seilgeschwindigkeit zwischen 0,1 und 10 m/m, die unabhängig von der Seillänge auf der Trommel konstant gehalten wird. Mit dem Fördergerät gekoppelt ist eine Seillängenmeßeinrichtung, die die ablaufende Seillänge mit einer Genauigkeit besser 1% des Meßwertes mißt. Der Meßwert wird am Fördergerät digital angezeigt, außerdem ist ein digitaler Ausgang zum Rechenanschluß vorgesehen.

Die elektronischen Baugruppen der Bohrlochsonde werden optimiert in Bezug auf Funktionssicherheit, Auflösequalität und Raumeinsparung. Dies gilt insbesondere für Impulsformung und Verstärkung.

Außerdem ist eine leistungsfähige Peltier-Kaskade zu entwickeln.

4.2. Software und Auswerteelektronik

Das Hauptauswerteprogramm wird z.Zt. umgeschrieben zu sog. Programmpaketen, die eine wahlweise Zusammenstellung eines neuen Hauptprogramms erlauben aus Subroutines wie Glättung, Peaksuche, Peaklagenüberprüfung, Eichung auf unterschiedliche Elemente usw. Weiterhin ist die gleichzeitige Akquisition und Berechnung der erhaltenen Spektren in Bearbeitung, so daß ein quasikontinuierlicher Meßbetrieb möglich wird. Der Anschluß eines X-Y-Plotters (Teufe/Konzentration) ist vorbereitet und erste Unterlagen zum Anschluß eines Magnetbandes erarbeitet. Das gesamte System kann in Kürze in einen klimatisierten Container eingebaut werden, der mit einer 8 KW Stromversorgung versehen ist. Damit wird das gesamte BLS-System von externer Energieversorgung unabhängig.

3211.3 BOHRKERNANALYTIK

H. Braun, W. Apenberg, G. Potgeter

Ziel dieses Vorhabens ist, die Analyse von Bohrkernen zu verbessern. Die Gewinnung von Bohrkernen ist in der Prospektionsphase von größter Bedeutung, da nur auf diesem Weg die notwendigen geologischen Aussagen gemacht werden können. Daneben liefern diese Kerne das Material für die Wertmetallanalysen und Aufschlußuntersuchungen. Auch in der Phase der Exploration bleibt die Gewinnung von Kernen beim Einsatz von in-situ Analysengeräten, wie Bohrlochsonden, in kleineren Stückzahlen wegen der an ihnen zu studierenden Strukturen wichtig. Eine Verbesserung der Analyse besteht in der Möglichkeit einer zerstörungsfreien, zonenweisen Metallgehaltsbestimmung auf der Basis der Neutronenaktivierungsanalyse und Röntgenfluoreszenzanalyse in Verbindung mit einer on-line Auswertung, so daß die interessierenden Werte in kurzer Zeit vor Ort bestimmt werden können.

Das Programm für 1973 sah vor, die chemischen Untersuchungen weiterzuführen und eine Laboranlage zur Weiterentwicklung der Verfahren und der Analysentechnik zu erstellen.

1. Funktionsschema

Die Konstruktion einer Laboranlage zur Analyse von Bohrkernen wurde abgeschlossen (Abb. 3211.25). Das Gerät besteht aus einer Californium-Quelle, die mit einer Transporteinrichtung gekoppelt ist. Diese verschiebt den Bohrkern in Längsrichtung und führt ihn an der Neutronenquelle und, nach entsprechender Abklingzeit, in derselben Weise am Detektor vorbei. Man erhält somit kontinuierlich aus der durch Neutronenaktivierung erzeugten Aktivität das Konzentrationsprofil des Bohrkerns. Für extrem kurze Abklingzeiten müssen Aktivieren und Messen in direkter Folge nacheinander möglich sein. Deshalb läßt die Transporteinrichtung auch ein unmittelbares Übersetzen des Kernes, untere Grenze 5 sec, von der Quelle zum Detektor zu. Das Fahrrohr ist so ausgebildet, daß sowohl feste Bohrkernkerne als auch in einen Schlauch gepreßte Sedimentkerne aus Metallseifen-Lagerstätten vermessen werden können.

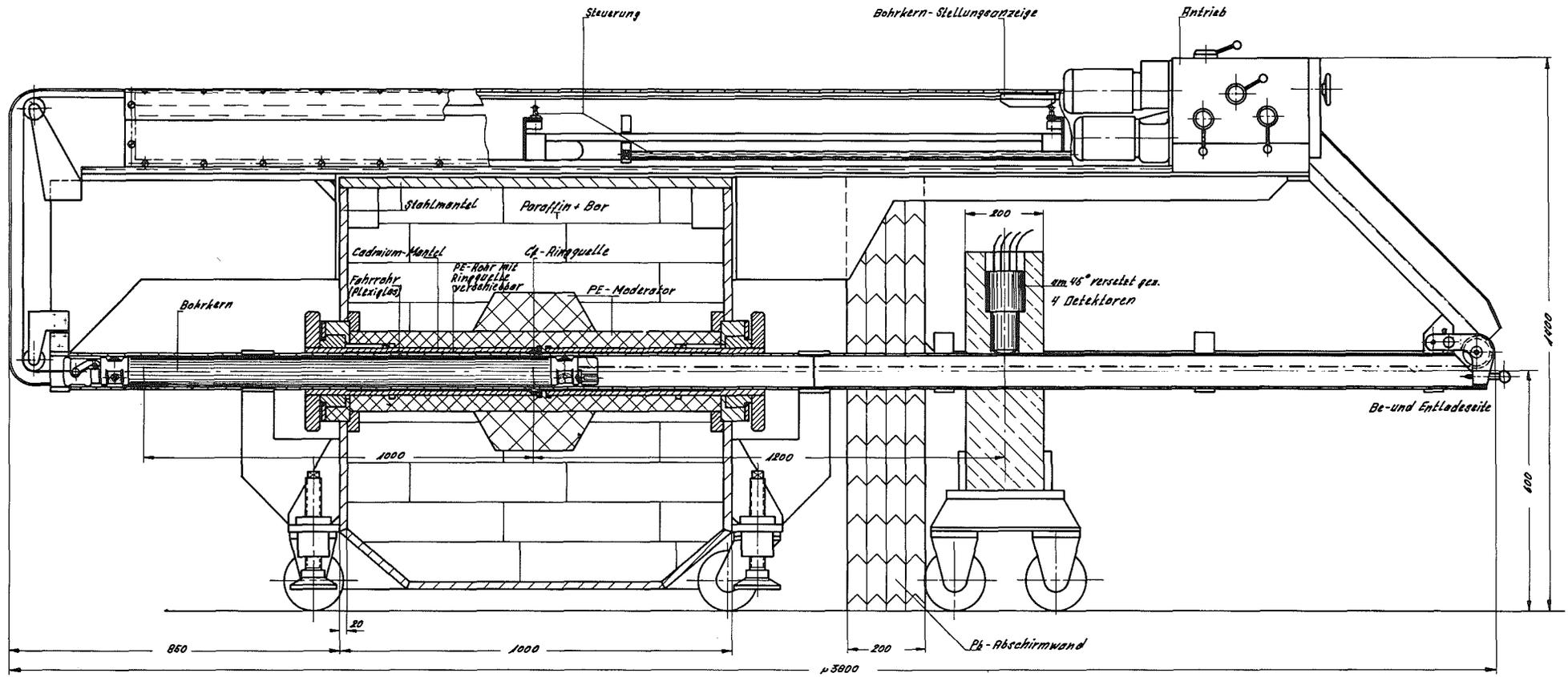


Abb. 3211.25: Laborgerät für die Bohrkernanalyse

Ein Problem bei den Vorversuchen stellte die gleichmäßige Aktivierung über den Querschnitt des Kernes dar. Sie sollte zunächst durch Drehen des Bohrkernes erreicht werden. Wir entschieden uns jedoch für ein neuartiges Konzept, nämlich die Verwendung einer Californium-Ringquelle, durch die der Bohrkern geschoben wird. An der Meßstelle werden entsprechend vier Detektoren ringförmig angeordnet.

2. Komponenten des Analysengerätes

2.1 Abschirmwagen

Der Abschirmwagen, als quadratischer Behälter mit Deckel ausgebildet, besteht aus 20 mm dickem Stahlblech. Er ist gefüllt mit borierten Paraffinstein, auf 4 Laufrollen verfahrbar und läßt sich durch 4 Gewindespindeln aufbocken. Im Zentrum wird die Californium-Ringquelle in einem PE-Gewinderohr gehalten.

2.2 Steuerungs- und Positionierungsmechanismus

Die Steuerung zur Positionierung des Fahrrohres geschieht durch 4 Endschalter. 2 Endschalter, montiert an einem Schlitten, werden durch eine Gewindespindel bewegt. Die Gewindespindel wird angetrieben von 2 Kegeln, die ihre Drehbewegung über einen Freilauf von dem Schaltgetriebe erhalten. An der Unterseite des Steuerungsmechanismus befindet sich ein Führungsrohr. Das Führungsrohr durchdringt den Abschirmwagen in zentraler, horizontaler Richtung. Im Zentrum des Abschirmwagens wird das Führungsrohr von der Ringquelle umgeben.

2.3 Fahrrohr

Das Fahrrohr wird im Führungsrohr mittels einer Zugkette von der Bestrahlungsposition zur Meßposition bewegt. Zur Beschickung mit Bohrkernen und Sedimentkernen außerhalb des Führungsrohres läßt sich das Fahrrohr von der Zugkette abkoppeln.

2.4 Antrieb

Das Schaltgetriebe, versehen mit zwei E-Motoren, bewegt über ein Kettenritzel die Zugkette mit angekoppeltem Fahrrohr. Bei kontinuierlichem Vorschub ist die Bestrahlzeit der Bohrkerne direkt proportional der Abtriebsdrehzahl des Schaltgetriebes.

3212 ANALYSE VON OBERFLÄCHENLAGERSTÄTTEN

3212.1 MANGANKNOLLENANALYSENSYSTEM

Ziel dieses Vorhabens ist die Bereitstellung eines schleppbaren Gerätesystems für die Exploration von Manganknollen, mit dem der Wertmetallgehalt der Knollen, ihre Größe und Populationsdichte sowie weitere für den Abbau notwendige Daten ermittelt werden können, sowie die Entwicklung hierfür notwendiger Verfahren. Zwischenziel ist der Einsatz eines Versuchsgerätes, das die wesentlichen Komponenten für die Wertmetallanalyse enthält, in der Tiefsee.

Das Programm 1973 sah vor, in einer Serie von Versuchen sowie mit Neutronen- und Gammatransportrechnungen die wesentlichen Bedingungen für die technische Konzeption des Versuchsgerätes zu fixieren. Weiter sollten das elektronische Gesamtsystem (Meßwerterfassung, -verarbeitung, -transport und -auswertung), das Probenahmesystem (Aufnehmen der Knollen vom Boden) und das Gerät selbst konzipiert und die wesentlichen Komponenten in Angriff genommen werden.

1. Physikalische Voraussetzungen

U. Fanger, R. Pepelnik, H. Würz, H. Eberle

1.1 Einfanggammaskopie an Manganknollen

1.1.1 Geometriefestlegung

Die Berechnung der Flußverteilung der 9 MeV-Quanten aus der $Ni(n,\gamma)$ -Reaktion in Manganknollen ergab eine Zunahme der Detektorzählrate bei Vergrößerung des Knollenbehälters bis zu einem Durchmesser von 50 cm (92).

Da die dabei zu erwartenden Gesamtzählraten bereits die Energieauflösung der γ -Messung beeinträchtigen, wurde der Durchmesser des Knollenbehälters in der Schleppsonde auf 35 cm festgelegt. Für die Bestimmung der Metallgehalte in den Erzknollen über die Messung der (n, γ) -Reaktion, der γ -Transmission und des Neutronenflusses bei variabler Meßzeit und Schüttdichte wird ein kubischer Plexiglaszylinder verwendet. Seine Maße (35 cm Innendurchmesser, 35 cm Höhe und 1 cm Wandstärke) sowie die des zentralen Aluminiumrohrs mit 2,9 cm Durchmesser, das zum Einführen der Cf-Quelle dient, stimmen in etwa mit den Maßen des Knollenbehälters in der Schleppsonde überein.

Zur Abschwächung der Cf- γ -Strahlung dient eine Bleiabschirmung, die den Ge-Detektor beschattet, von 17 cm Länge, 0,9 - 1,7 cm Breite und 3,5 cm Höhe. Ähnlich wie in der Schleppsonde umgibt das Analysengefäß ein 5 cm dicker Moderator aus Paraffin. Die Einfanggammastrahlung aus dem darin enthaltenen Wasserstoff wird durch einen 20 cm langen und $19 \times 19 \text{ cm}^2$ breiten Bleikollimator abgeschirmt, der innen zur Schwächung des schnellen Neutronenflusses mit Lithium-Paraffin ausgefüllt ist. Zusätzlich wird der γ -Detektor durch 15 mm Pb-, 1 mm Cd- und 1 mm Cu-Blech gegen niederenergetische γ -Strahlung abgeschirmt, die sich hauptsächlich aus Compton-gestreuten γ -Quanten und im Kollimator induzierter Röntgenstrahlung aufbaut. Diese Abschirmung wird im in-situ Gerät teilweise durch die Legierung "Ti Al V 64" und Li_2CO_3 ersetzt.

Unter Berücksichtigung dieser Abschirmungen und des maximal zulässigen schnellen Neutronenflusses am Ort des Germaniumdetektors ergibt sich ein Abstand desselben zur 1 mg Cf-Quelle von 55 cm.

Für die Schüttdichtemessung (s.a. Abschnitt 1.2.2) wurde am oberen Rand des Zylinders diametral eine 10 m Ci Co-60 Quelle mit einer $20 \times 11 \times 17 \text{ cm}^3$ Bleiabschirmung und ein $6,9 \times 6,9 \text{ cm}^2$ NaJ(Tl)-Kristall mit einer $19 \times 24 \times 29 \text{ cm}^3$ Bleiabschirmung einjustiert. Der Strahlquerschnitt der γ -Strahlen beträgt $72 \times 4 \text{ mm}^2$. Der NaJ-Kristall wird gegen Aktivierung durch thermische Neutronen zusätzlich mit 20 cm Paraffin und mit 2 cm Li_2CO_3 , zu 95% angereichert mit Li-6, abgeschirmt. Der Abstand dieses Detektors zur Behältermitte beträgt 61 cm.

Der hinter dem Bleikollimator am Ort des Ge(Li)-Detektors gemessene schnelle Neutronenfluß betrug $19 \text{ n/cm}^2\text{sec}$. Daraus resultiert eine zu erwartende Lebensdauer der Ge-Diode von etwa 8 Wochen. Diese Zeit wird hinsichtlich des in-situ Einsatzes für mehr als ausreichend erachtet, da die maximale Länge einer Forschungsfahrt 4 Wochen beträgt. Der Versuch, das Schleppsondengewicht durch Reduktion der Bleikollimatoren zu verringern, führte zu einem negativen Ergebnis. Es ergab sich, daß sich sowohl das Peak-zu-Untergrund-Verhältnis als auch die Energieauflösung infolge der Erhöhung der γ -Zählraten in beiden Detektoren verschlechtern würde. Der Fehler der Transmissionsmessung wird z.B. um 33% größer, wenn man den Kollimator des NaJ-Kristalls um 5 cm verkürzt. Die in Abb. 3212.1 gezeigten Kollimatoren stellen somit das Minimum der Kollimatorgrößen dar.

1.1.2 Spektroskopie in festgelegter Geometrie

Der Knollenbehälter wurde mit etwa 32 kg Manganknollen mit einem durchschnittlichen Wassergehalt von 22% und einer mittleren Dichte von $2,8 \text{ g/cm}^3$ und 16 l 3,5%-iger Salzlösung gefüllt. In verschiedenen langen Meßzyklen wurden mit der 1 mg Cf-Quelle mit einer Quellstärke von $2 \cdot 10^9 \text{ n/sec}$ (n, γ)-Spektren aufgenommen. Abb. 3212.2 zeigt typische Spektren von 5, 10 und 20 min Meßzeit.

Die bereits in Ref. (73) angedeutete Möglichkeit, die Elementkonzentrationen auf das Manganknollenvolumen zu beziehen und deren Volumenanteil indirekt über die Chlorlinienintensität zu bestimmen, setzt die Existenz einer hinreichend intensiven und von anderen Linien ungestörten Chlorlinie voraus. Die stärkste Linie bei 6,11 MeV kann schon bei geringer Auflösungsverschlechterung mit der Mn-Linie bei 6,10 MeV zusammenfallen, so daß die um 30% schwächere 6,62 MeV Cl-Linie herangezogen werden muß. Zur Intensität dieser Linie trägt bei dem verwendeten coaxialen Detektor mit 14 cm^3 empfindlichem Volumen die Einfachentkommelinie der 6,11 MeV Cl-Linie mit 25% bei (schlechte Auflösung bringt einen zusätzlichen Beitrag der Entkommelinie der 6,10 MeV Mn-Linie von ca. 2%), so daß die Fläche des Linien-tripletts bei 6,62 MeV vergleichbar wird mit der Fläche der 6,11 MeV Linie (s. Abb. 3212.2).

Auf nähere Einzelheiten der Spektren sowie auf die statistischen Fehler der Linien, die für die Bestimmung der Elementkonzentrationen herangezogen werden, wird im Abschnitt 1.3 eingegangen.

Es wurde auch untersucht, ob Tiefseesedimente die prompte (n,γ) -Analyse von Manganknollen stören. Die Erzkongregationen liegen am Meeresboden eingebettet in zähen, fast klebrigen Sedimenten. Die vom Meeresboden aufgesaugten Manganknollen können im Separator der Schleppsonde nicht immer vollständig von Tiefseeton gereinigt werden. Es wurden daher am FR2 Proben mit Manganknollen, Meerwasser und drei verschiedenen Sedimenten mit thermischen Neutronen bestrahlt und mit Hilfe eines planaren Ge(Li)-Detektors spektroskopiert. Das (n,γ) -Spektrum einer Mischung von 63 Gew.% Manganknollen und 37 Gew.% Sediment zeigte keine deutlichen Unterschiede zu einem Spektrum von Erzknollen ohne Tiefseeton. Lediglich die Intensität der wesentlich unterhalb des interessierenden Energiebereichs liegenden Silizium- und Kohlenstoff-Linien erhöhte sich um etwa 20%. Da bei Aufsaugversuchen (93) gezeigt werden konnte, daß die Erzknollen im Separator weitgehend von dem sie umgebenden Schlick gesäubert werden, konnten die Untersuchungen des Einflusses der Sedimentbeimischung auf die Schüttdichtebestimmung und die Neutronenflußverteilung entfallen.

In weiteren Experimenten wurde untersucht, wieweit die unterschiedlichen Metallkonzentrationen der einzelnen Knollen in Verbindung mit dem steilen Abfall des Neutronenflusses im Analysengefäß bei verschiedenen Schüttungen verschiedene mittlere Konzentrationswerte vortäuschen. Es ergab sich, daß dieser Effekt nicht zu vernachlässigen ist. Die durchschnittliche Größe dieser Abweichungen muß noch festgestellt werden.

Im folgenden wurde geprüft, wie stark die Erschütterungen der Schleppsonde am Meeresboden und die Mikrophonie der Zuleitungen zum Ge-Detektor die Energieauflösung verschlechtern. Ein Kryostat mit Ge(Li)-Detektor wurde dabei auf einem Schwingtisch durch Klopfen, Schwingen mit groben Stößen und Schwingen mit Drehungen und groben Stößen erschüttert. Die Auflösung verschlechterte sich dabei um 6 bis 50%; entsprechend nahm auch das Peak-zu-Untergrund Verhältnis um maximal 50% ab. Da weder die Halterung dieses Detektors noch die Hochspannungszuleitung optimal aufgebaut war, kann diese Verschlechterung um 50% als unrealistischer Extremfall angesehen werden. Detaillierte Unter-

suchungen in dieser Richtung sind im Gange.

1.2 Transmissionsuntersuchungen

1.2.1 Theoretische Untersuchungen zur exakten Schüttdichte-Bestimmung

Bereits im vorangehenden Halbjahresbericht von PACT (73) wurde darauf hingewiesen, daß eine Bestimmung der Schüttdichte der Erzknollen im Knollenbehälter (z.B. über eine γ -Transmissionsmessung) zur Angabe von Elementkonzentrationen, die sich üblicherweise auf das Probengewicht beziehen, unumgänglich ist. Bei dem Zweikomponentengemisch Wasser-Manganknollen gehen zwei unbekannte Parameter, nämlich die Knollendichte ρ_K und der Knollenvolumenanteil V_K/V , in die Transmissionsgleichung ein, so daß die Schüttdichte

$$\rho_s = (L\bar{\mu}_K)^{-1} (\bar{\mu}_w \ell_K \rho_w - \ln t) \quad 1.2.1.1$$

nicht eindeutig bestimmbar ist. In diesem Ausdruck für ρ_s tritt nämlich neben den Konstanten L (Behälterdurchmesser), $\bar{\mu}$ (Massenabsorptionskoeffizient für Wasser bzw. Knollen), ρ_w (Dichte des Wassers und der Meßgröße t (Transmission relativ zu Wasser) noch die Unbekannte ℓ_K auf, die mit dem Knollenvolumenanteil V_K/V über

$$\ell_K = L V_K/V \quad 1.2.1.2$$

verknüpft ist. Die Unbekannte ℓ_K kann durch 2 Transmissionsmessungen bei 2 verschiedenen Energien mit entsprechenden Koeffizienten $\bar{\mu}_1$ und $\bar{\mu}_2$ eliminiert werden, so daß die Schüttdichte durch

$$\rho_s = L^{-1} \frac{\bar{\mu}_{w2} \ln t_1 - \bar{\mu}_{w1} \ln t_2}{\bar{\mu}_{w1} \bar{\mu}_{K2} - \bar{\mu}_{w2} \bar{\mu}_{K1}} \quad 1.2.1.3$$

bestimmt ist. Die in diesem Ausdruck auftretenden Differenzen sind allerdings klein, und damit wird die Genauigkeitsanforderung an die Messung der Transmissionen t_1 und t_2 hoch. Außerdem muß berücksichtigt werden, daß die $\bar{\mu}_K$ -Werte von der variierenden chemischen Zusammensetzung der Knollen abhängen:

$$\bar{\mu}_K = \sum_i c_i \bar{\mu}_i, \quad 1.2.1.4$$

wobei $\bar{\mu}$ der Massenabsorptionskoeffizient des mit der Konzentration c_i

auftretenden i-ten Elementes ist. Bezeichnet man die chemisch bedingte Änderung von $\bar{\mu}_K$ mit $\delta\bar{\mu}_K$, so läßt sich die Bedingung für den minimalen chemischen Einfluß auf die Schüttdichtebestimmung durch die Gleichung

$$\frac{\delta\bar{\mu}_{K_2}}{\delta\bar{\mu}_{K_1}} = \frac{\bar{\mu}_{w_2}}{\bar{\mu}_{w_1}} \quad 1.2.1.5$$

ausdrücken. Damit ist im wesentlichen das γ -Energiepaar E_1 und E_2 , mit dem die Transmissionen gemessen werden sollen, festgelegt.

Für die numerischen Abschätzungen wurden eine mittlere (α), eine schwach (β) und eine extrem (γ) modifizierte chemische Zusammensetzung *) der Erzknollen im Sinne der Angaben von Mero (94) zugrunde gelegt. Als eine günstige Energiekombination erwies sich 0,6 MeV und 3,0 MeV. (Tab. 3212.1 und 3212.2). Bei einer vorausgesetzten Transmissionsmeßgenauigkeit von 1^o/oo kann hierbei der Gesamtfehler der Schüttdichtebestimmung knapp unter 10% bleiben, wenn nur mäßige Variationen in der chemischen Zusammensetzung zugelassen werden; der Gesamtfehler kann auf 20% ansteigen, wenn auch extreme Änderungen in den Elementkonzentrationen vorkommen. Diese starke Abhängigkeit der Schüttdichtebestimmung von der chemischen Zusammensetzung muß als äußerst unbefriedigend angesehen werden. Die exakte Lösung der Schüttdichtgleichung über zwei Transmissionsmessungen scheint im Hinblick auf die Manganknollenanalyse wenig praktikabel zu sein.

1.2.2 Transmissionsexperimente

Im Abschnitt 1.3 wird gezeigt, daß die Konzentration eines Elementes mit der entsprechenden Linienintensität im Gammasktrum über die reziproke Schüttdichte ρ_s als Proportionalitätskonstante verknüpft ist. Wegen der Beziehung

$$\rho_s = \rho_K V_K / V \quad (= \rho_K \frac{L}{L}) \quad 1.2.2.1$$

*) α : Mn (24 %), Fe (14 %), Si (10 %), O (40 %), Al (0 %), Rest (12 %).
 β : Mn (14 %), Fe (14 %), Si (20 %), O (40 %), Al (0 %), Rest (12 %).
 γ : Mn (10 %), Fe (4 %), Si (24 %), O (40 %), Al (10%), Rest (12 %).

gehen damit unbekannte Schwankungen der Knollendichte ρ_K und des Knollenvolumenanteils (Packung) V_K/V direkt in den Gesamtfehler der Konzentrationsbestimmung ein. Nach Mero (94) liegt die experimentell gefundene Knollendichte zwischen 2,1 und 3,1 g/cm³, kann also $\pm 19\%$ um den mittleren Wert 2,6 g/cm³ schwanken; nach neueren Angaben ("interocean 73") ist der Wertebereich für ρ_K : 1,8 bis 2,4 g/cm³, was einer Schwankungsbreite von $\pm 14\%$ um 2,1 g/cm³ entspricht. Über die Fluktuationen in der Packungsdichte der Knollen gibt es keine Literaturangaben. Da V_K/V im wesentlichen nur von Form und Größenverteilung abhängt, kann die Variation auch an geometrisch ähnlichem Material, z.B. Kieselsteinen, untersucht werden. Lange (95) hat bei Versuchen mit Kieselsteinen, wobei die Größenverteilung und der Schüttvorgang variiert wurden, eine maximale Schwankung von $\pm 12\%$ gefunden. An acht in Form und Größe extrem unterschiedlichen Manganknollenproben wurde dagegen eine Streuung des V_K/V -Wertes von $\pm 17\%$ gemessen.

Mit den Schwankungsbreiten $\delta\rho_K/\rho_K = \delta V_K/V_K = 17\%$ ergibt sich maximal ein Schüttdichtefehler (und damit - bei Vernachlässigung der übrigen Fehleranteile - ein maximaler Konzentrationsfehler) von 34 % oder ein mittlerer Fehler von 24 %. Obwohl nun - wie in Abschnitt 1.1.1 ausgeführt - Transmissionsmessungen in praxi keine exakte Bestimmung der Schüttdichte ermöglichen, so wird doch dadurch eine wesentliche Reduzierung dieser Unsicherheit erreicht. In der Gleichung 1.2.1.1 von Abschnitt 1.2.1 geht als einzige Unbekannte $\ell_K = L V_K/V$ ein. Da der makroskopische Absorptionsquerschnitt von Manganknollen etwa doppelt so groß ist wie der von Wasser, gilt für die Summanden dieser Gleichung etwa die Beziehung:

$$\ell_K \bar{\mu}_w \rho_w = - \ln t \quad 1.2.2.2$$

Dies bedeutet, daß bei einer ausreichend genauen Transmissionsmessung (1 %) der Fehler der Schüttdichte nur noch durch die unbekannte Packung V_K/V bestimmt wird; die Schwankungsbreite $\delta V_K/V_K$ geht lediglich zur Hälfte in den Gesamtfehler ein. Damit reduziert sich der Gesamtfehler von 34% bzw. 24% auf 8,5%.

Anhand von acht Manganknollensorten, die sich in Dichte, Form, Größe und Zusammensetzung unterscheiden, wurde diese Aussage geprüft.

Tab. 3212.1: Der relative Fehler der Schüttdichte $\left| \frac{\delta \rho_s}{\rho_s} \right|$ in % bei Doppeltransmissionsmessungen aufgrund variabler chemischer Zusammensetzung $\alpha \rightarrow \beta$ bzw. $\alpha \rightarrow \gamma$ (Werte in Klammern)

γ -Energie I MeV	γ -Energie II MeV			
	0,3	0,6	1,0	2,0
0,6	22 (50)			
1,0	20 (55)	13 (90)		
2,0	23 (61)	15 (2)	14 (37)	
3,0	59 (138)	6 (18)	6,5 (25)	4 (21)

Tab. 3212.2: Der relative Fehler der Schüttdichte $\left| \frac{\delta \rho_s}{\rho_s} \right|$ in % bei Doppeltransmissionsmessungen aufgrund einer angenommenen Unsicherheit von $\epsilon = 1^0/00$ in der gemessenen Transmission.

γ -Energie I MeV	γ -Energie II MeV			
	0,3	0,6	1,0	2,0
0,6	3,4			
1,0	3,4	33,8		
2,0	5,9	31,4	23,0	
3,0	27,6	5,2	5,1	7,5

Das Ergebnis findet sich in Tab. 3212.3. Die über die Transmission ermittelten Schüttdichten unter Annahme einer mittleren Packung \bar{V}_K/V weichen höchstens 8 % von den "exakten", konventionell bestimmten ρ_s -Werten ab.

Tab. 3212.3: Schüttdichtewerte ρ'_s aus Einfach-Transmissionsmessungen mit konstant angenommenem, mittlerem \bar{V}_K (bzw. V_K).

Probe Nr.	ρ'_s (g cm ⁻³)	$\frac{\rho'_s - \rho_s}{\rho_s}$ *) (%)
1	0,817	+ 3
2	0,844	+ 4
3	0,900	- 6
4	0,881	+ 8
5	0,852	+ 5
6	0,656	- 1
7	0,829	- 5
8	0,854	- 4

*) ρ_s ist der "exakte", konventionell bestimmte Schüttdichtewert.

Zur Klärung der Frage, ob die Methode der Schüttdichtebestimmung auch in der realistischen Analysieranordnung bei eingesetzter Cf-Quelle funktioniert, wurden Transmissionsmessungen mit ²⁵²Cf-Quelle (1 mg) im Zentralrohr des Knollenbehälters unter Verwendung einer 10 mCi-⁶⁰Co Drahtquelle der Dimension 1 mm ϕ x 70 mm in einem Schlitzkollimator durchgeführt. Brauchbare Ergebnisse kamen erst nach Verbesserung der γ -Abschirmung und einer zusätzlich angebrachten Neutronenabschirmung (Li₂CO₃) zur Vermeidung einer Aktivierung des NaJ(Tl)-Detektors zustande. Bei Durchstrahlung des Knollen-Wasser-Gemisches (bzw. nur Wasser) wurden in einer 10 min-Messung als Optimum $17 \cdot 10^3$ (bzw. $37 \cdot 10^3$) Impulse in beiden Co-60-Peaks zusammen und ca. $225 \cdot 10^3$ Impulse im Peakuntergrund erreicht, was einer statistischen Genauigkeit von 4%

entspricht. Im Vergleich zur Unsicherheit der Packung V_K/V von 17 % mag dies ausreichen. Verwendet man statt Co-60 eine Th-228-Quelle, wobei für eine γ -äquivalente Aktivität zu 10 mCi Co-60:28 mCi Th-228 erforderlich ist, läßt sich die statistische Transmissionsgenauigkeit verbessern. Bei einem Transmissionsweg von $L = 20$ cm erreicht man für die 2,614 MeV-Linie des Th-228 eine knapp doppelt so hohe Transmission, und wegen des 3,5-fach kleineren Untergrundes bei 2,6 MeV erhöht sich (bei Berücksichtigung einer 30 %-Einbuße an Ansprechwahrscheinlichkeit) das Peak-Untergrund-Verhältnis knapp um den Faktor 4. Insgesamt kann dadurch bei gleicher Genauigkeit die Meßzeit auf ein Drittel verkürzt oder bei gleicher Meßzeit die statistische Unsicherheit von 4 % auf 2,3 % herabgesetzt werden.

Für die Füllstandsanzeige, die mit der Transmissionsmessung gekoppelt werden kann, ist von Bedeutung, daß die transmittierte γ -Intensität beim Übergang von Wasser auf Wasser-Knollen-Gemisch auf etwa den halben Wert absinkt (genauer 1 : 1,7 für $L = 20$ cm). Welche Transmissionsmeßzeit zur Entscheidung der Frage gebraucht wird, ob der Soll-Füllstand erreicht ist oder nicht, hängt wegen der Zählratenstatistik davon ab, welche Sicherheit der Aussage verlangt wird. Der Zusammenhang zwischen der Wahrscheinlichkeit P für eine Fehlinterpretation, gekennzeichnet durch die Standardabweichung σ der Transmissionsmessung und den Zählratenunterschied ΔT für Wasser und Knollen-Wasser-Gemisch, und den Meßzeiten t_{mess} ist in der Tabelle für beide Quellen ersichtlich.

Tab. 3212.4: Meßzeiten für die Füllstandsanzeige

P (%)	$\Delta T =$	t_{mess} (sec) (10 mCi Co-60)	t_{mess} (sec) (28 mCi Th-228)
0,3	3σ	20	6
4,5	2σ	7	2
31,7	1σ	1,7	0,6

Für einen Routinebetrieb scheint die Bedingung $\Delta T = 3 \sigma$ erstrebenswert zu sein.

Durch Erhöhung der Aktivität können die Meßzeiten weiter abgesenkt werden. Eine obere Grenze für die praktikablen Aktivitäten ist durch das begrenzte Abschirmungsgewicht gegeben.

Bisher wurde bei den Überlegungen zur Füllstandsanzeige davon ausgegangen, daß die Transmissionsmessung nur zwischen Wasser und dem Wasser-Knollen-Gemisch zu unterscheiden hat. Im realistischen Betrieb aber wird während des Auffüllvorgangs ein Volumen mit hindurchfallenden Knollen, im gefüllten Zustand ein Volumen mit ruhenden Knollen durchstrahlt. Zu klären ist also, ob der Unterschied zwischen der "statischen" (Schüttdichte ρ_s) und der "dynamischen" Knollendichte (ρ_F) ausreicht für die Füllstandsanzeige.

Aus den Aufsammlerversuchen (93) wurde für die Füllgeschwindigkeit des Manganknollenbehälters ein Wert von $Q = 2$ kg/sec (für eine mittlere Belegungsdichte) ermittelt. Andererseits wurde eine praktische Mindestfallgeschwindigkeit von $v \geq 15$ cm/sec abgeschätzt. Nimmt man an, daß die Knollen auf der Höhe des transmittierten Strahles gleichmäßig verteilt auf die ganze Behälterfläche F mit $d = 35$ cm \emptyset fallen, dann ist einfach

$$\rho_F \leq \frac{Q}{v_{\min} \cdot F} = 0,139 \text{ g/cm}^3. \quad 1.2.2.3$$

Dieser Wert ist klein gegen $\rho_s = 0,80 \text{ g/cm}^3$. Gegenüber knollenfreiem Wasser wird die Transmission durch die dynamische Knollendichte um ungünstigstenfalls etwa 10% erniedrigt, womit die Aussagen der Tab. 3212.4 nur ganz unwesentlich modifiziert werden.

1.3 Genauigkeitsanalyse

Der Stand der Voruntersuchungen gestattet, eine Überlegung zur erreichbaren Gesamtgenauigkeit in der Konzentrationsbestimmung bei der Erzknollenanalyse anzustellen. Es wird davon ausgegangen, daß eine Knollenprobe genau bekannter chemischer Zusammensetzung für alle weiteren Messungen in exakt gleicher Geometrie als Standard genommen werden kann. Es ändern sich dann von einer Messung zur anderen voraussetzungsgemäß natürlich die chemische Zusammensetzung (mit Einfluß auf das Neutronenflußprofil) und die Schüttdichte der Knollen, d.h.

also der Packungsanteil V_K/V und die Knollendichte ρ_K . Das Flußprofil sollte gemessen werden; daraus läßt sich ein Korrekturfaktor $K(\phi)$ ableiten, der für die Normierung des Zusammenhangs zwischen Linienintensität und Konzentration verwendet werden muß. Bezieht man nun die Konzentrationswerte C_m auf die Probenmasse, bestimmt man also die Schüttdichte ρ_s auf irgendeine Weise, so sind Linienintensität und Konzentration einfach verknüpft miteinander:

$$C_m = \alpha \cdot \rho_s^{-1} K(\phi) P, \quad 1.3.1$$

wobei α eine von Meßgeometrie und Detektordaten abhängige Konstante und P die Linienintensität des interessierenden Elementes ist. Der aus den Einzelfehlern resultierende Gesamtfehler ist dann einfach:

$$\frac{\delta C_m}{C_m} = \left[\left(\frac{\delta P}{P} \right)^2 + \left(\frac{\delta \rho_s}{\rho_s} \right)^2 + \left(\frac{\delta K}{K} \right)^2 \right]^{1/2} \quad 1.3.2$$

Bezieht man dagegen alternativ die gemessenen Konzentrationen auf das Knollenvolumen - was i.a. unüblich ist, so bestimmt man am günstigsten das Volumenverhältnis V_K/V über die Chlorlinienintensität I . Dabei gilt die Beziehung

$$K(\phi) I \approx V - V_K \quad \text{oder} \quad 1.3.3$$

$$V_K = V - \beta K(\phi) I \quad 1.3.4$$

mit einer gewissen Konstante β . Damit gewinnt nun die Beziehung zwischen Linienintensität und Konzentration C_V die Form:

$$C_V = \alpha' (V - \beta K(\phi) I)^{-1} K(\phi) P \quad . \quad 1.3.5$$

In diesem Falle setzt sich der Gesamtfehler folgendermaßen aus den Einzelkomponenten zusammen

$$\frac{\delta C_V}{C_V} = \left[\left(\frac{\delta P}{P} \right)^2 + \left(\frac{\delta K}{K} \right)^2 (1 + \beta K I / N)^2 + \left(\frac{\delta I}{I} \right)^2 \left(\frac{\beta K I}{N} \right)^2 \right]^{1/2} \quad 1.3.6$$

Labormessungen an neun verschiedenen Knollenproben haben ergeben, daß $V_K \approx \frac{1}{3} V$ gilt. Damit konkretisiert sich der Gesamtfehler zu:

$$\frac{\delta C_V}{C_V} = \left[\left(\frac{\delta P}{P} \right)^2 + 9 \left(\frac{\delta K}{K} \right)^2 + 4 \left(\frac{\delta I}{I} \right)^2 \right]^{1/2} \quad 1.3.7$$

Es zeigt sich hierbei also, daß der Genauigkeit der Neutronenflußkorrekturbestimmung besondere Bedeutung zukommt, daß aber auch die Unsicherheit der Chlorlinien-Intensitätsbestimmung stärker ins Gewicht fällt.

Die Fehler $\frac{\delta P}{P}$ und $\frac{\delta I}{I}$ wurden für eine numerische Abschätzung aus realistisch gemessenen Spektren mit den Meßzeiten 5', 10', 20' und 30' entnommen. Für die Neutronenflußkorrektur wurde ein systematischer Fehler von 3 % und eine Neutronendetektor-Zählrate von 10 cps angenommen. Für die vier genannten Zeiten wurde der Gesamtfehler berechnet und mit verschiedenen Elementkonzentrationen als Parameter graphisch in Abb. 3212.3 und 3212.4 dargestellt. Es zeigt sich deutlich, daß bei kleinen Meßzeiten, insbesondere bei größeren Elementkonzentrationen, die Transmissionsmethode zu genaueren Ergebnissen führt als das Chlorlinienverfahren.

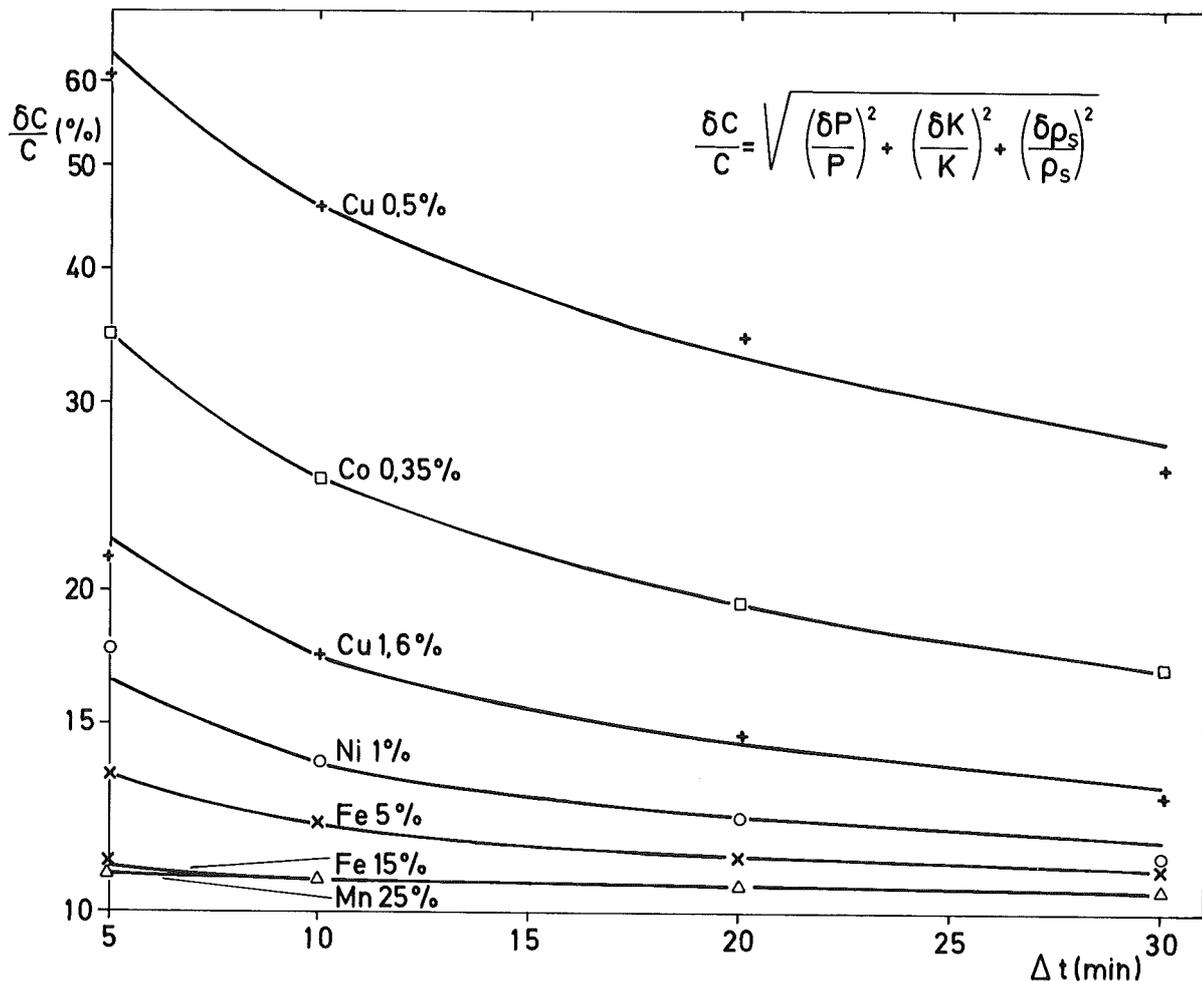


Abb. 3212.3: Analysenfehler bei Bestimmung der Schüttdichte

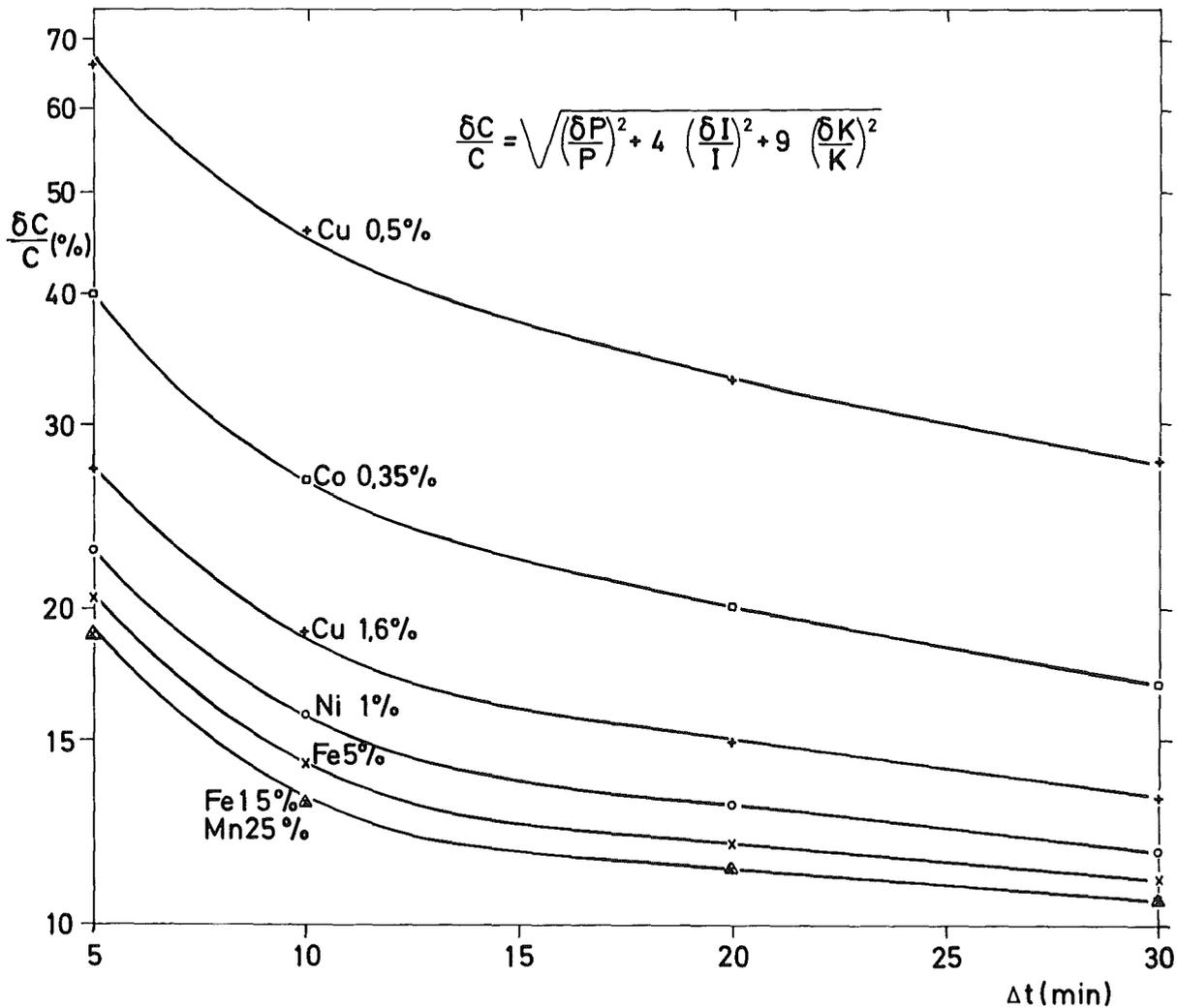


Abb. 3212.4: Analysenfehler bei Chlorlinien-Verfahren

2. Meßtechnische Entwicklung

L. Bösch, U. Tamm
 K. Borcharding, R. Döbele
 U. Fanger, G. Müller

2.1 Meßdatenerfassung und -verarbeitung

Parallel zur Entwicklung der Analysenmethode wurde ein detailliertes Konzept für die Erfassung der Meßdaten entworfen (Abb. 3212.5), die bei folgenden zur Bestimmung des prozentualen Wertmetallgehaltes der Manganknollen notwendigen Messungen anfallen und mit drei verschiedenen Detektoren ermittelt werden

- Neutroneneinfang - Gammaspektrum
- Schüttdichte der Manganknollen im Knollenbehälter
- Neutronenfluß in der Mitte und am Rande des Knollenbehälters.

Für die Messung des Neutroneneinfang-Gammaspektrum wird ein hochauflösender Ge(Li)-Detektor verwendet, der während der Meßzeit von einer

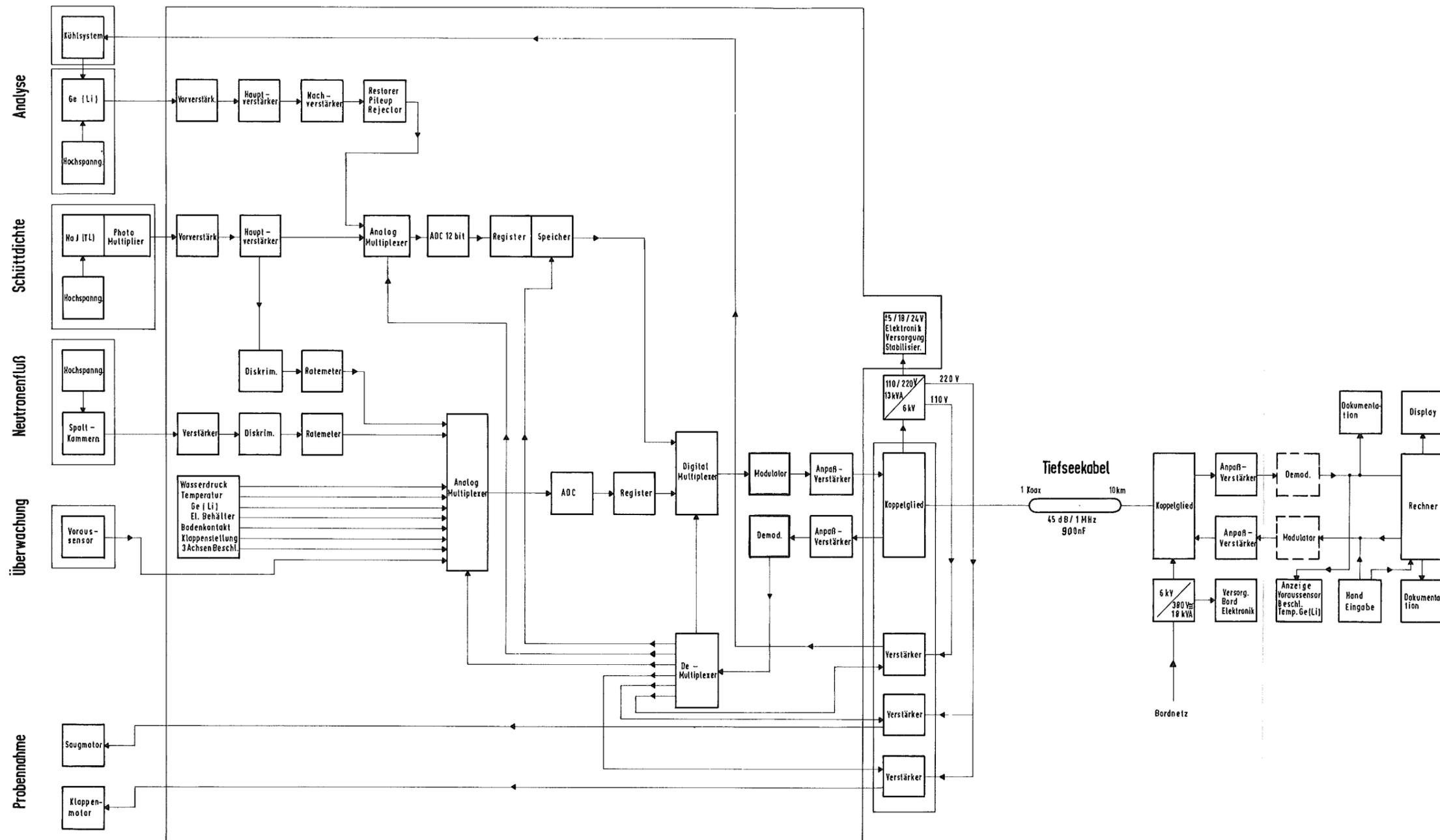


Abb. 3212.5: Blockdiagramm des Versuchsgertes zur Entwicklung eines Manganknollen-Analysensystems

Miniaturkältemaschine auf etwa 80 K gekühlt werden muß. Die während eines Meßzyklus auftretenden Temperaturschwankungen dürfen nicht größer als 0,4 K sein, damit die daraus resultierenden Verschiebungen im Energiespektrum den Betrag von 1 keV (96) nicht überschreiten. Die anschließende Elektronik (Vorverstärker, Hauptverstärker, Nachverstärker, Restorer und Pileup-Rejector Einheit) wird sowohl mit Blick auf gute Energieauflösung (5 keV Auflösung bei einer Energie von 7 MeV) wie auf die Verarbeitung hoher Zählraten bis etwa 50.000 Impulse pro Sekunde ausgelegt, wobei die Verwendung eines gepulsten Vorverstärkers und eines Hauptverstärkers mit Trapezfilter berücksichtigt ist. Eine direkte Übertragung der analogen Impulse über das ca. 8 km lange Koaxialkabel zum Computer an Bord des Schiffes ist aus zwei Gründen nicht möglich. Einmal würde, bedingt durch Störungen auf dem Übertragungsweg, die Impulsamplitude und damit die Energieinformation zu stark verfälscht, zum anderen ist wegen der großen Dämpfung des Kabels die Übertragung hoher Zählraten kaum möglich. Deshalb werden die Impulse in einem Analog-Digital-Wandler in 4.096 Kanäle (12 bit) sortiert und binär codiert wieder ausgegeben. Anschließend werden sie in einem Speicher mit einer Kapazität von 4 K bei 16 bit Wortlänge zwischengespeichert und nach Beendigung der Analyse durch Computerbefehl abgerufen und über einen Modulator einer Trägerfrequenz von etwa 100 kHz aufmoduliert. Die zu übertragende Datenmenge beträgt dann ca. 65.000 bit und wird in einer Zeit von etwa 30 Sekunden übertragen.

Für die Konzentrationsnormierung wurde nach Untersuchung zweier alternativer Möglichkeiten dem Transmissionsverfahren der Vorzug gegeben: hierbei werden die von einer γ -Quelle emittierten und in den Manganknollen je nach Schüttdichte mehr oder weniger stark absorbierten Strahlen mit einem NaJ(Tl)-Detektor nachgewiesen. Die Impulse werden im Photomultiplier und in der anschließenden Verstärkerkette verstärkt, anschließend digitalisiert und in einem Speicher mit einer Kapazität von 256 Worten zu 12 bit zwischengespeichert. Der Abruf dieser Daten erfolgt analog dem Abruf der Daten des Neutroneneinfang-Gammaspektrums im Anschluß an die Analysezeit.

Der Neutronenfluß schließlich wird mit Spaltkammer, Verstärker, Diskriminator und Ratemeter bestimmt. Der am Ratemeter anstehende Spannungspegel muß ebenso wie ein Teil der von den Überwachungssensoren und der Füllstandsanzeige gelieferten Daten ebenfalls digitalisiert werden. Über einen vom Computer gesteuerten Analogmultiplexer werden sie einem Analog-Digital-Wandler zugeführt, binär codiert ausgegeben und nach anschließender Modulation übertragen.

An Bord des Schiffes werden die Daten wieder demoduliert und dem Computer zugeführt. Der Computer hat nun zwei Aufgaben zu erfüllen: zum einen soll er die Steuerung und Kontrolle der Schleppsonde übernehmen (siehe Abschnitt 2.2), zum anderen soll er die von der Sonde übertragenen Daten auswerten. Zu diesem Zweck enthält er Rechenprogramme zur Bestimmung des Wertmetallgehaltes in Prozenten unter Berücksichtigung der dafür notwendigen Korrekturen durch Schüttdichte- und Neutronenflußmessung. Unmittelbar nach Empfang aller Meßdaten beginnt automatisch die Auswertung, so daß die Ergebnisse innerhalb des folgenden Arbeitszyklus zur Verfügung stehen. Neben der Ausgabe über einen Drucker mit Zeit- und Positionsangabe werden die Daten redundant auf Magnetband gespeichert.

2.2 Steuerung und Kontrolle des Analysengerätes

Die zweite vom Computer zu erfüllende Aufgabe ist die Steuerung und Kontrolle der Schleppsonde. An Hand eines bei normaler Funktion des Gerätes ablaufenden Arbeitszyklus wurde in Form eines Flußdiagramms ein Konzept für das Steuer- und Kontrollprogramm entwickelt, das in Abb. 3212.6 dargestellt ist. Dies entspricht dem augenblicklichen Stand der Gesamtkonzeption für den ersten Einsatz des Versuchsgerätes. Das Konzept ist in mancher Hinsicht bewußt einfach gehalten, um dem Operateur an Bord bei der Datenausgabe einen sicheren und schnellen Überblick über den Zustand und die Operationen der Sonde zu gewährleisten. Bei Fehlermeldungen wird deshalb in den meisten Fällen der Eingriff des Operateurs vorgesehen und nur in ganz klaren Situationen eine automatische Programmänderung eingebaut. Die jeweilige Programmphase und etwaige Fehlermeldungen werden vom Computer mit genauer Zeitangabe auf einer Ausgabeliste ausgedruckt (Tab.3212.5).

Nach dem von Hand eingeleiteten Start des Steuer- und Kontrollprogramms wird zu Beginn des Absenkens der Sonde in kurzen Zeitabständen (alle 1 bis 5 Sekunden) nach eventuell auftauchenden Hindernissen, nach der Lage des Gerätes (Beschleunigung), nach dem Zustand der Elektronik (Sicherungen), nach dem Bodenkontakt und nach dem Wasserdruck zur Ermittlung der Tauchtiefe des Gerätes gefragt. In größeren Zeitabständen werden die Klimawerte (Temperatur des Ge-Detektors, Feuchte und Innentemperatur des Elektronik-Behälters) abgefragt.

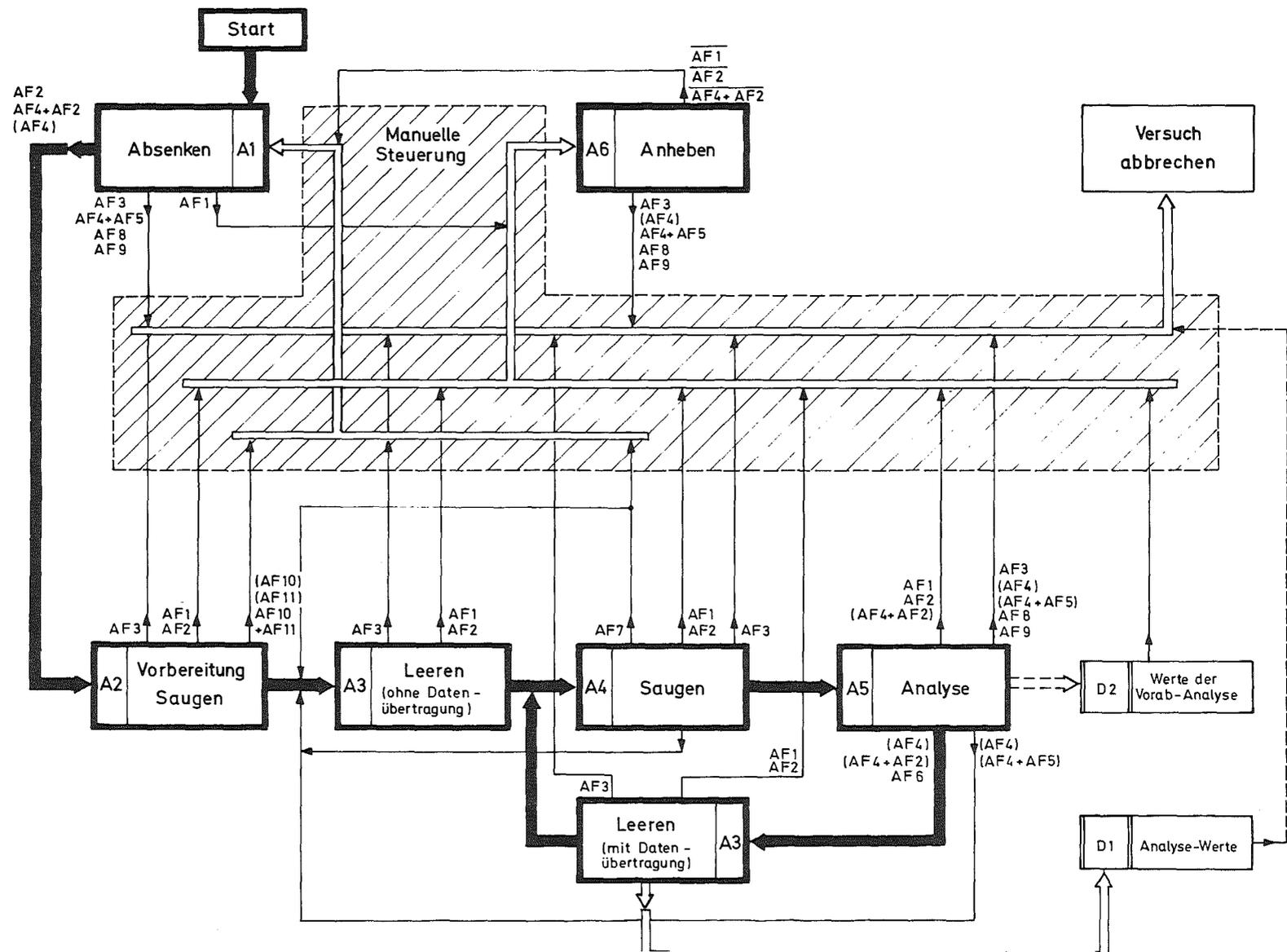


Abb. 3212.6: Blockdiagramm für Steuer- u. Kontrollprogramm

Tab. 3212.5: Übersicht über die Protokoll-Ausdrucke

Phasenmeldung	Fehlermeldung
A 1 Absenken	AF 1 Hindernis
A 2 Bodenkontakt	AF 2 Schräglage
A 3 Leeren	AF 3 Sicherung defekt
A 4 Saugen	AF 4 Meßwert T_D , $T_D > T_D \text{ max.}$ (Temperatur Ge-Detektor)
A 5 Analysenbeginn	
A 6 Anheben	AF 5 T_D - Regelung defekt
	AF 6 $\Delta T_D > \Delta T_D \text{ max}$
	AF 7 Saugzeit zu lang Anzahl der Bodenkontakt-Messungen Anzahl der Bodenkontakte
	AF 8 Meßwert T_c , $T_c > T_c \text{ max.}$ (Temperatur Elektronik-Behälter)
	AF 9 Meßwert M , $M > M_{\text{max}}$ (Feuchte)
	AF 10 Bodenkontakt nicht ausreichend
	AF 11 Längsbeschleunigung zu groß

Nach dem ersten Bodenkontakt werden die Arbeitsbedingungen der Sonde in dem Vorbereitungsprogramm für die Saugphase überprüft. Die Manganknollen sollen bei möglichst gleichförmiger Fahrt und möglichst konstantem Bodenkontakt in den Knollenbehälter gepumpt werden. Um diese Voraussetzungen zu gewährleisten, wird unter Berücksichtigung der sehr wahrscheinlich unvermeidlichen "Sprünge" der Sonde abgewartet, bis die über eine vorgegebene Zeit gemittelten Beschleunigungswerte unter einem festgesetzten Grenzwert liegen und die ebenfalls über einen konstanten Zeitabschnitt geforderte Mindestanzahl von Bodenkontakten erreicht wird.

Wenn diese beiden Bedingungen erfüllt sind, wird nach einer Entleerung des Knollenbehälters (um sicher zu gehen, daß keine Rückstände die nachfolgende Analyse verfälschen und die Bodenklappe zu Beginn der Saugphase geschlossen ist) die Saugpumpe eingeschaltet.

Während dieser Phase läuft wie auch in den vorausgegangenen Phasen das schnelle Kontrollprogramm, um hier vor allen Dingen ein Hindernis oder eine Schräglage der Sonde festzustellen. In beiden Fällen wird bei entsprechender Fehlermeldung (AF1 oder AF2) der Phasenablauf abgebrochen, das Kontrollprogramm zur weiteren Übermittlung von Hindernis-, Schräglage- und Sicherungs-Daten in Gang gehalten und die Sonde angehoben. Wenn keine derartige Störung eintritt, wird bis zur Meldung "Behälter gefüllt" weitergepumpt. Auch während der Saugphase wird der Bodenkontakt überprüft und wie in der Vorbereitungsphase die relative Anzahl der positiven Bodenkontaktmeldungen über einen vorgegebenen Zeitabschnitt ermittelt. Ist nach Ablauf dieses Zeitabschnittes das Analysengefäß noch nicht gefüllt, gibt die ausgedruckte Meldung (AF 7) Aufschluß über die mögliche Ursache der Verzögerung: zu geringer Bodenkontakt.

Die Analysenphase beginnt mit dem Einschalten der Analog-Digital-Wandler (ADC) zur Digitalisierung und Speicherung der Detektorimpulse. Gleich zu Beginn der Phase werden die Klima- und Neutronenflußwerte übermittelt. Eine zu hohe Temperatur des Ge-Detektors läßt eine nicht mehr tragbare Analysenverfälschung erwarten und führt ebenso wie Hindernis- und Schräglagemeldung zum Ausschalten der ADC's. Mögliche Fehlermeldungen führen zum Umschalten auf verkürztes Kontrollprogramm und fordern den Operateur zum manuellen Eingriff auf.

Nach Ablauf einer Analysenzeit von wenigen Minuten ruft der Computer die bisher gespeicherten Daten zur Vorab-Analyse ab und vergleicht sie mit bestimmten Sollwerten. Findet keine Übereinstimmung statt, kann der Operateur entscheiden, daß die Phase abgebrochen und der Zyklus mit den Phasen "Leeren" und "Saugen" wiederholt wird.

Erfolgt während der Analysenphase kein vorzeitiger Abbruch, schaltet der Computer nach einer vorgebbaren Analysenzeit die ADC's aus und fragt noch einmal die Temperatur des Ge-Detektors ab. Die Auswertung dieser Messung ergibt bei überhöhter Temperatur eine Meldung, aber auch bei zu hoher Temperaturdrift gegenüber der ersten Messung zu Analysenbeginn. Im Gegensatz zur ersten Messung hat eine Meldung jetzt keine automatische Programmänderung zur Folge.

Nach der sich anschließenden Phase "Leeren", bei der der Knollenbehälter geleert und die Analysenwerte aus den Speichern abgefragt werden, beginnt der Zyklus mit der Saugphase von neuem.

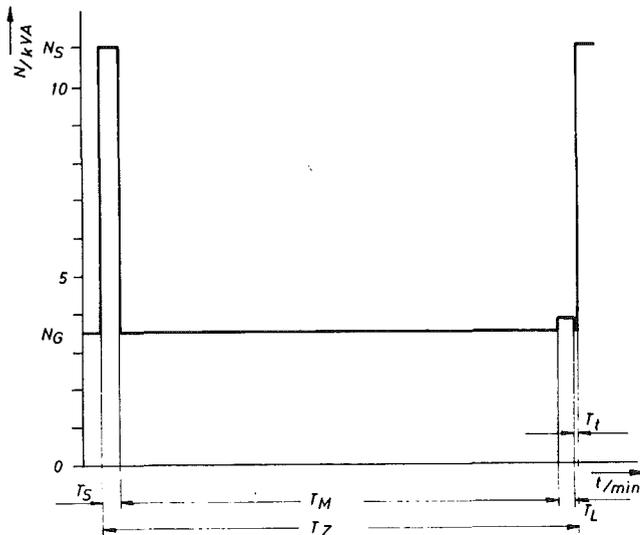
2.3 Energieversorgung und Leistungselektronik

Der Energiebedarf der Sonde geht aus Abb. 3212.7 hervor. Die Grundlast ist durch die Elektronik und das Kälteaggregat gegeben, die Lastschwankungen durch Pumpen- und Klappenantrieb. Die Stromversorgung der Elektronik wird verlustarm über Schalterregler gegen die starken Netzschwankungen stabilisiert, die motorischen Antriebe über Thyristor-Wechselstromsteller geschaltet.

Elektronik	0,75 kW	
Fernsehanlage	0,5 kW	
Kälteanlage	2,25 kVA	3,5 kVA = Grundlast N_G
Pumpenantrieb	7,5 kVA	11 kVA = Spitzenlast N_S
Klappenantrieb	1,0 kVA	

Abb. 3212.7:

Leistungszyklus



T_Z = Zykluszeit	typisch ~15 min
T_S = Saugzeit	" 0,5 min
T_M = Meßzeit	" 14 min
T_L = Leerungszeit	" 0,5 min
T_t = Totzeit	" << 1 sec.

2.4 Schlepp- und Versorgungskabel

Das Kabel hat die Aufgabe, neben der mechanischen Führung des gesamten Sondenkörpers die Energieversorgung und in beiden Richtungen den Datentransfer zu übernehmen. Aus der begrenzten Schlepp- und Windenkraft des Schiffes sowie der Notwendigkeit kleiner Biegeradien resultiert die Forderung nach kleinem Kabeldurchmesser und -gewicht bei durch den Sondenkörper festgelegten dynamischen Beanspruchungen. Der hohe, intermittierende Energiebedarf der Sonde und die Forderung nach geringer Wellendämpfung für den Datentransfer steht dem entgegen.

Die für ein Schleppkabel optimale Anordnung eines bewehrten Koaxialkabels zeigt die Abb. 3212.8. Das erforderliche 10 km lange Koaxialkabel führt über 6 kV / 50 Hz die Energie zu, im Frequenzbereich 70 kHz bis 130 kHz erfolgt der Datentransfer. Das später erforderliche Fernsehbild wird nach entsprechender Frequenzumsetzung zwischen 0,5 MHz und 8 MHz übertragen. Die Kabeldämpfung im Bereich 100 kHz ist mit 14 db/10 km unproblematisch, für das Fernsehbild wurde wegen der bei 10 MHz auf 150 db/10 km steigenden Dämpfung die Mehrfachumsetzung in den genannten Frequenzbereich vorgesehen.

Die naheliegende Energieübertragung mittels Gleichstrom scheidet wegen des erhöhten Platz- und Gewichtsbedarfs für die Umformung aus.

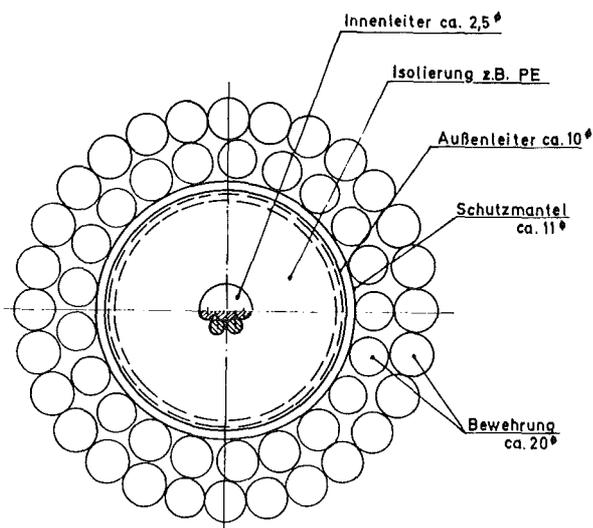


Abb. 3212.8:

Tiefseeschleppkabel

3. Technische Entwicklung

J. Lange, U. Tamm
G. Böhme, F. Brüderle
K. Hain, J. Hübener, V. Prech

3.1 Versuchsgerät

Schwierigkeiten, die sich bei der Handhabung des BABCOCK-Probennehmers und des IBAK-Fernsehschlittens an Bord des RF "Valdivia" ergaben, sowie neue Erkenntnisse über die Tragfähigkeit des Meeresbodens in dem geplanten Explorationsgebiet und der Zwang zur Anpassung an die elektrischen und mechanischen Gegebenheiten des Schiffes, machten die Ausarbeitung eines neuen Schleppgestells (Abb. 3212.9 und 3212.10) notwendig.

Die Hauptforderungen waren: Geringere Abmessungen, verringertes Gesamtgewicht und großflächige Gleitkufen. Um beim Hantieren an Bord und beim Anlaufen gegen auf dem Meeresboden vorhandene Hindernisse die empfindliche elektrische und elektronische Ausrüstung, die E-Motoren und den kerntechnischen Analysenteil zu schützen, werden diese Teile stoßgedämpft über Federbeine am äußeren Rahmen aufgehängt. Der Federweg wird so gewählt, daß auftretende Beschleunigungen von 10 g noch verkraftet werden können.

Das Gesamtgewicht der Sonde beträgt nach derzeitigem Stand ca. 2,5 t in Luft, ca. 1,8 t in Wasser; die äußeren Abmessungen sind: Länge ca. 4 m, Breite ca. 2,5 m, Höhe ohne Stabilisierungsflossen ca. 1,4 m. Aus dem Gewicht und der zur Verfügung stehenden Gleitfläche ergibt sich eine Bodenbelastung von 30 g/cm^2 im Wasser, was für die Bodenverhältnisse im Explorationsgebiet als ausreichend angesehen werden kann.

Aus Gesprächen mit Benutzern der Valdivia und der VTG (Besitzer) ergibt sich, daß das nunmehr konzipierte Gerät handhabbar sein müßte.

3.2 Auslegung der Druckbehälter und Wärmeabfuhrprobleme

Die Druckbehälter dienen zur Aufnahme der elektrischen und elektronischen Bauteile. Die Entscheidung, ob ein Fernsehsystem ebenfalls

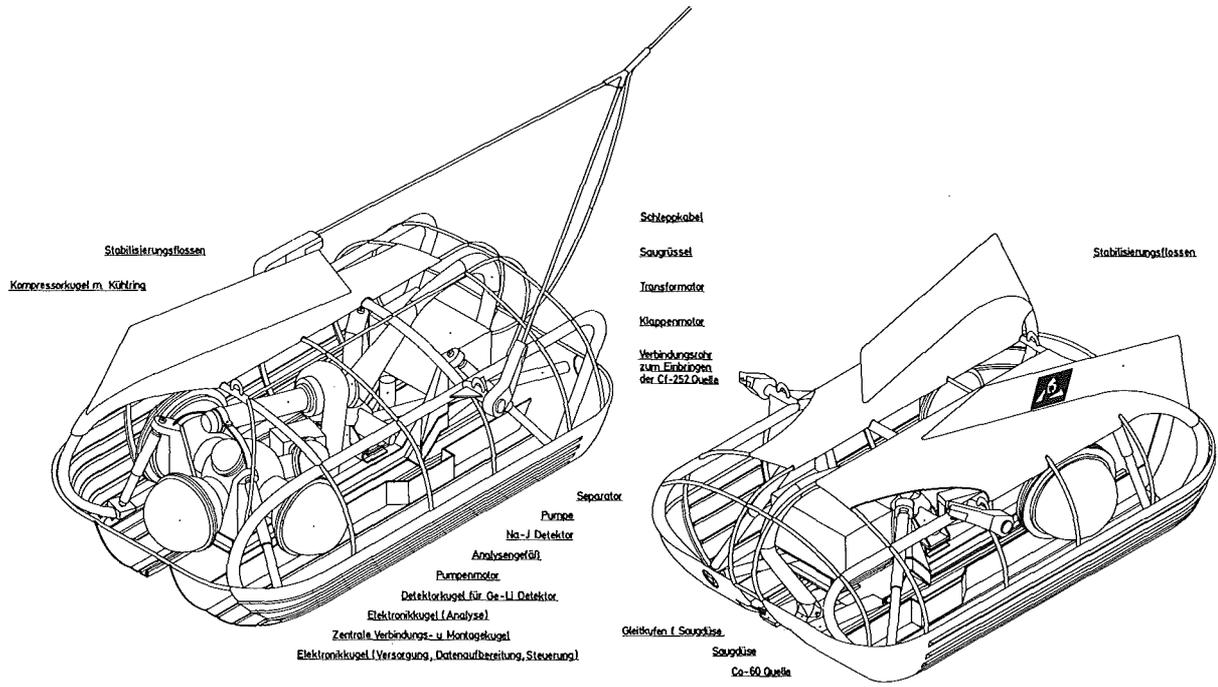


Abb. 3212.9: Versuchsgerüt (Schema)

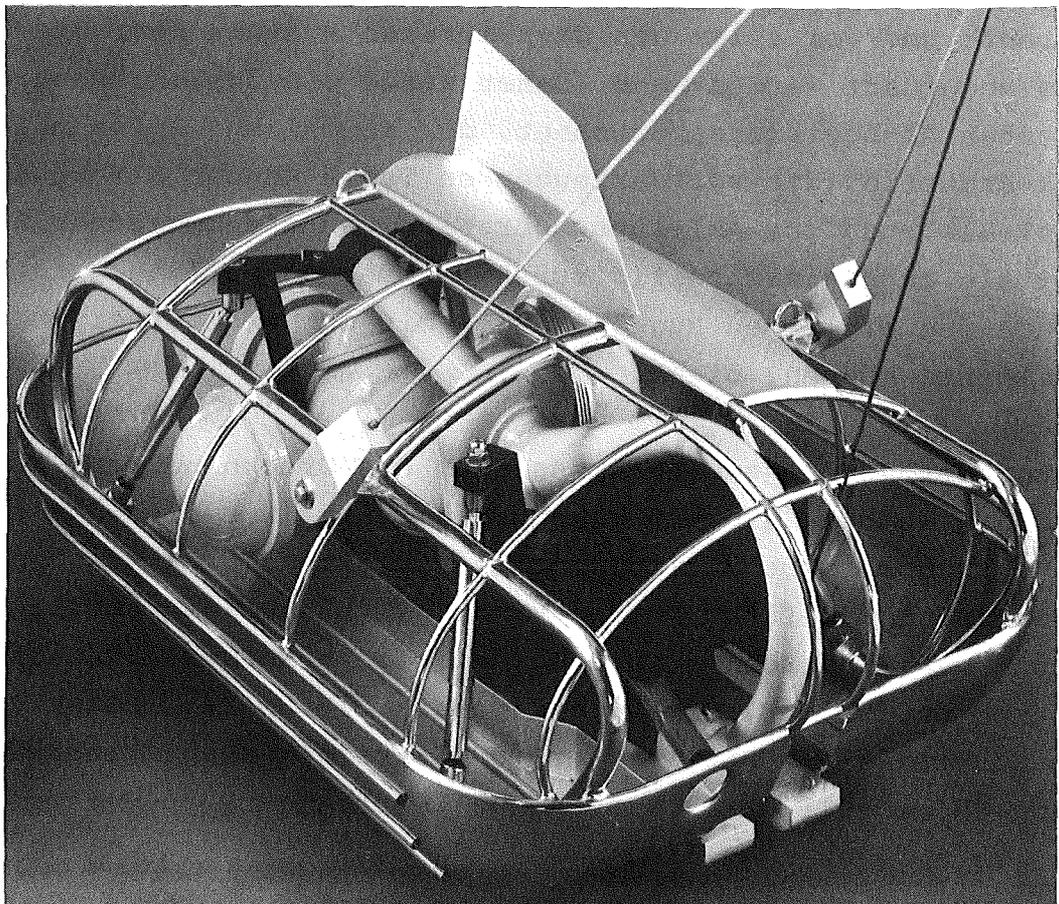


Abb. 3212.10: Versuchsgerüt

eingebaut werden wird, steht noch aus. Aus Gründen des Gewichtes, der unterschiedlichen Wärmeentwicklung und der gegenseitigen elektrischen Beeinflussung wurden einzelne Baugruppen getrennt voneinander in mehreren Druckkugeln aufgeteilt: Kugel für das Kälteaggregat; Kugel für Elektronik des Analysenverfahrens und Datenaufbereitung; Kugel für Leistungselektronik, Steuerungen und Versorgung; Kugel für den Kryostaten mit Ge(Li)-Detektor.

Durch den hohen Umgebungsdruck von ca. 600 bar ergeben sich große Wandstärken, was zu hohen Gewichten der Druckbehälter führt. Überschlägige Berechnungen der Wandstärken nach AD-Merkblättern wurden durchgeführt, wobei korrosionsbeständige Alu-Legierungen, ein hochlegierter Duplexstahl (Ferrit, Austenit), glasfaser- und kohlenstofffaserverstärkte Kunststoffe, Glas und verschiedene Titan-Legierungen untersucht wurden.

Aufgrund der hohen Festigkeit, dem geringen spezifischen Gewicht und der fertigungstechnischen Möglichkeiten wurde als Werkstoff die Titanlegierung Ti Al V 64 gewählt. Der Nachteil von Titan als Werkstoff liegt in der sehr schlechten Wärmeleitfähigkeit, so daß die Abwärme der Elektronik und vor allem des He-Kompressors nicht über die Kugelflächen allein abgeführt werden kann. Daher wurde ein Zwischenring aus einer hochfesten Al-Legierung berechnet, der sowohl zur Aufnahme der Elektronik-Bauteile (die wärmeerzeugenden Teile können direkt aufgesetzt werden) als auch zur Ableitung der Wärme an die umgebende Luft bzw. Wasser als auch gleichzeitig zur Aufnahme von Verbindungsrohren zwischen den einzelnen Kugeln, durch die notwendige Leitungen gezogen werden können, dient.

Aufgrund der vorliegenden Abmessungen des Druckbehälters für die Meßelektronik wurden Berechnungen durchgeführt, wie die während des in-situ-Versuches im Behälter erzeugte Verlustwärme nach außen, also an das Seewasser abgeführt werden kann. Die bisherigen Überlegungen zur Leistung der Elektronik ergaben, daß eine Wärmemenge von etwa 400 W abgeführt werden muß. Die Lufttemperatur im Druckbehälter soll für einen zuverlässigen Betrieb der Meßelektronik nicht über 30° C liegen, und die Wärme soll durch erzwungene Luftströmung an die Wand des Druckbehälters abgegeben werden.

Der Wärmedurchgang vom Behälter-Inneren zum kühlenden Meerwasser erfolgt sowohl über die beiden Titankugelhälften (Material Ti AlV 64) wie über den dazwischenliegenden Aluminiumring (Mat. AlZnMg 1 F 36). Die Berechnung wird in drei Schritten durchgeführt: Wärmeübergang von der Luftströmung auf Kugel und Ring, Wärmeleitung in Kugel und Ring und Wärmeübergang von Kugel und Ring in Wasser. Für den Wärmeübergang zwischen Luft und Druckbehälter sowie zwischen Druckbehälter und Wasser müssen zunächst folgende Größen (97) berechnet werden:

$$\text{Reynolds-Zahl} \quad \text{Re} = \frac{w \gamma l}{\eta g} \quad 3.2.1$$

$$\text{Prandtl-Zahl} \quad \text{Pr} = \frac{3600 \eta g c}{\lambda} \quad 3.2.2$$

$$\text{Nußelt-Zahl} \quad \text{Nu} = 0,664 \sqrt{\text{Re}} \sqrt[3]{\text{Pr}} \quad 3.2.3$$

$$\text{Wärmeübergangszahl} \quad \alpha = \frac{\text{Nu} \lambda}{l} \quad 3.2.4$$

Für den Wärmestrom von der Behälteroberfläche zum Kühlmittel gilt folgende Gleichung:

$$Q = \alpha F (t_w - t_K) \quad 3.2.5$$

Setzt man die oben angegebenen Größen in die Gleichung für den Wärmestrom ein, ergibt sich ein Produkt aus einer Konstanten, die die Stoffeigenschaften des Kühlmittels zusammenfaßt, und aus Größen, die vom Konstrukteur in gewissen Grenzen beeinflusbar sind.

$$Q = \text{const.} \sqrt{\frac{w}{l}} F (t_w - t_K) \quad 3.2.6$$

Die Definition und Zahlenangaben für die verwendeten Formelzeichen finden sich in Tab. 3212.6 und 3212.7.

Für die Berechnung des Wärmeüberganges zwischen Luft und Druckbehälter sollen folgende Voraussetzungen gelten: Die mittlere Lufttemperatur beträgt $t = 30^\circ\text{C}$ bei einer Wandtemperatur des Druckbehälters von $t = 6^\circ\text{C}$, die Geschwindigkeit der strömenden Luft ist $w = 2,5 \text{ m/s}$, die Strömung ist laminar und die Wärmeaustauschfläche des Ringes wird durch Kühlrippen auf das Dreifache der Zylindermantelfläche des Ringes erhöht.

Tab. 3212.6: Stoffwerte der Kühlmittel

Stoffwerte		Dimension	Wasser t= 4°C	Luft t=30°C
γ	spez. Gewicht	kg/m ³	1000	1,29
η	dyn. Zähigkeit x 10 ⁻⁶	kg s/m ²	163	1,90
c	spez. Wärme	kcal/kg grd	1	0,242
λ	Wärmeleitzahl	kcal/m h grd	0,515	0,022
t_K	Temperatur des Kühlmittels	grd		

Tab. 3212.7: Abmessungen und Stoffwerte des Druckbehälters

		Dimension	Kugel	Ring
δ	Wandungsdicke	m	0,024	0,104
l	Länge in Strömungsricht. innen	m	0,56	0,080
l	Länge in Strömungsricht. außen	m	0,60	2,41
F	Wärmeaustauschfläche innen	m ²	0,98	0,42
F	Wärmeaustauschfläche außen	m ²	1,13	1,37
λ	Wärmeleitzahl	kcal/m h grd	6,1	144
t_w	Temperatur der Wandung	grd		

Für die Berechnung des Wärmeübergangs zwischen Druckbehälter und Wasser gelten folgende Voraussetzungen: Die Wassertemperatur beträgt 4°C, der Temperatursprung zwischen Behälteroberfläche und Wasser ist $\Delta t = 0,5^\circ\text{C}$, die Geschwindigkeit des strömenden Wassers ist $w = 1 \text{ m/s}$, die Strömung soll laminar sein (diese Annahme ist etwas ungünstiger als die bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 1 m/s tatsächlich vorhandene turbulente Strömung, gilt jedoch für mögliche kleinere Strömungsgeschwindigkeiten), und die Wärmeaustauschfläche des Ringes wird auf das Dreifache der jetzigen Abmessungen erhöht.

Für die Wärmeleitung im Druckbehälter gilt folgende Gleichung für den Wärmestrom im Metall

$$Q = \lambda F \frac{t_i - t_a}{\delta} \quad 3.2.7$$

(die Definitionen und Zahlenangaben für die verwendeten Formelzeichen finden sich in Tab. 3212.7). Für die Berechnung wird angenommen, daß die Temperaturdifferenz zwischen Innen- und Außenwand des Druckbehälters $\Delta t = t_i - t_a = 1^\circ\text{C}$ beträgt.

Die sich aus dieser Berechnung bei den genannten Voraussetzungen ergebenden Wärmeströme sind in Tab. 3212.8 aufgeführt, aufgeteilt nach Wärmedurchgang durch Kugel und durch Ring.

Tab. 3212.8: Wärmeströme (Watt)

	Kugel	Ring	Gesamt
Wärmeübergang Luft-Metall	202	230	432
Wärmeleitung im Metall	290	740	1030
Wärmeübergang Metall-Wasser	515	310	825

Man erkennt, daß unter den gemachten Annahmen eine Verlustwärme von etwa 430 W abgeführt werden kann. Wird der Druckbehälter an der Meeresoberfläche bei einer Wassertemperatur von 24°C geschleppt, liegt bei gleicher Verlustwärme die Lufttemperatur im Inneren des Druckbehälters bei etwa 50°C . Diese Temperatur stellt die Obergrenze dar, bei der die Meßelektronik noch nicht geschädigt wird.

Um die Abfuhr der Kompressions- und Verlustwärme der Kompressoreinheit des Detektor-Kühlaggregates zu gewährleisten, ist eine zusätzliche Wärmeabfuhr durch ein Wärmeübertragungsmedium (z.B. R 11, CF Cl_3) an die Gehäusewand des Druckbehälters und damit an die Umgebung notwendig. Eine Abschätzung der Wärmeübertragungsverhältnisse wurde durchgeführt und aufgrund dieser Berechnungen kann gesagt werden, daß ein solcher Verdampfungs-Kondensationskreis mit R 11 technisch realisierbar ist. Es muß noch untersucht werden, ob die Bau-

elemente der Kompressoreinheit den angenommenen Druck im Behälterraum von 5 bar entsprechend 80°C als Stillstandsdruck aushalten und die Werkstoffe mit R 11 verträglich sind.

Erste Druckkugeln sind in der Fertigung und sollen für mechanische und wärmetechnische Tests verwendet werden, wobei in einer Druckkammer der NSW (Norddt. Seekabelwerke) der Umgebungsdruck von 600 bar simuliert werden kann.

Eine endgültige Wandstärkenberechnung soll evtl. nach diesen Versuchen mittels bei der Industrie vorhandener Computerprogramme ggf. nach der Finite-Element-Methode durchgeführt werden, wenn es sich herausstellen sollte, daß die bisherigen Berechnungen zu ungenau waren.

3.3 Kryotechnik

Zur Erprobung des Ge(Li)-Detektors wurden zwei maschinengekühlte Kryostate gebaut und einem kryotechnischen Versuchsbetrieb unterzogen. Dabei konnten mit beiden Kältemaschinen die geforderten Werte (Isoliervakuum, Temperatur-Konstanz, Betriebstemperatur) für den Kryostaten erreicht werden. Beide Maschinen wurden auch mit einem Detektor-Simulator bei der Firma LASCO, Straßburg, getestet, wobei bei beiden Systemen unter Betriebsbedingungen Mikrophonieeffekte auftraten.

Auf Grund der besseren Laufruhe und der günstigeren Geometrie wurde als Einsatzmaschine das Aggregat der Firma Cryogenic Technology, Massachusetts, Modell 70, ausgewählt.

In Mikrophonietests soll zusammen mit dem IAK in einem meßtechnischen Versuchsprogramm die Ursache der auftretenden Schwingungen ermittelt und diese eliminiert werden.

3.4 Probenahmesystem

3.4.1 Stationärer Versuchsstand

Nach Aufbau des hydraulischen Versuchsstandes wurden die Komponenten

Separator, Düse und Gummirüssel erprobt:

Eine 22 kW EMU-Einkanalaradpumpe diente als Förderpumpe, als Fördergut wurden Kieselsteine bis zu 80 mm Durchmesser, Anthrazit-Briketts und Eierkohlen verwendet. Die Fördergeschwindigkeit konnte durch einen eingebauten Schieber geregelt werden.

Ergebnisse:

- Zwei von drei Abscheidern haben sich bis zu einer Fördergeschwindigkeit von 2,5 m/sec bewährt.
- Die niedrigste Fördergeschwindigkeit, bei der aufgesammelt wurde, lag bei 1,6 m/sec.
- Waagrechte Leitungsteile müssen vermieden werden (Verstopfungen bei 2 m/sec Fördergeschwindigkeit, Fördergut Kohle)
- Die eingesetzten Düsenformen mußten für die Schleppversuche umgebaut werden (Neukonstruktion einer beweglichen Schleppdüse).

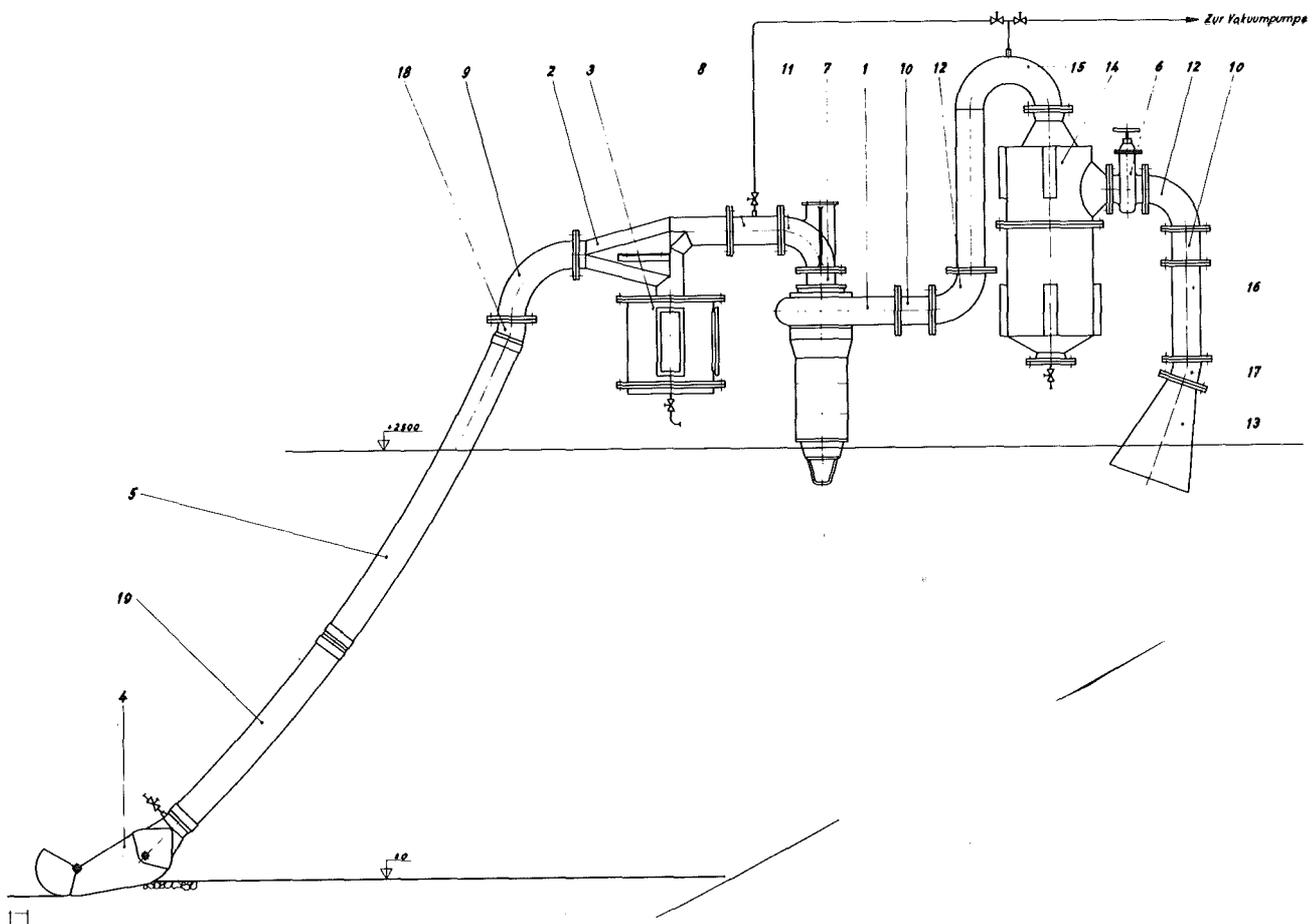


Abb. 3212.11: Manganknollen-Versuchs-Schleppanlage

Abb. 3212.12:

Probenahmesystem im
Wasserkanal

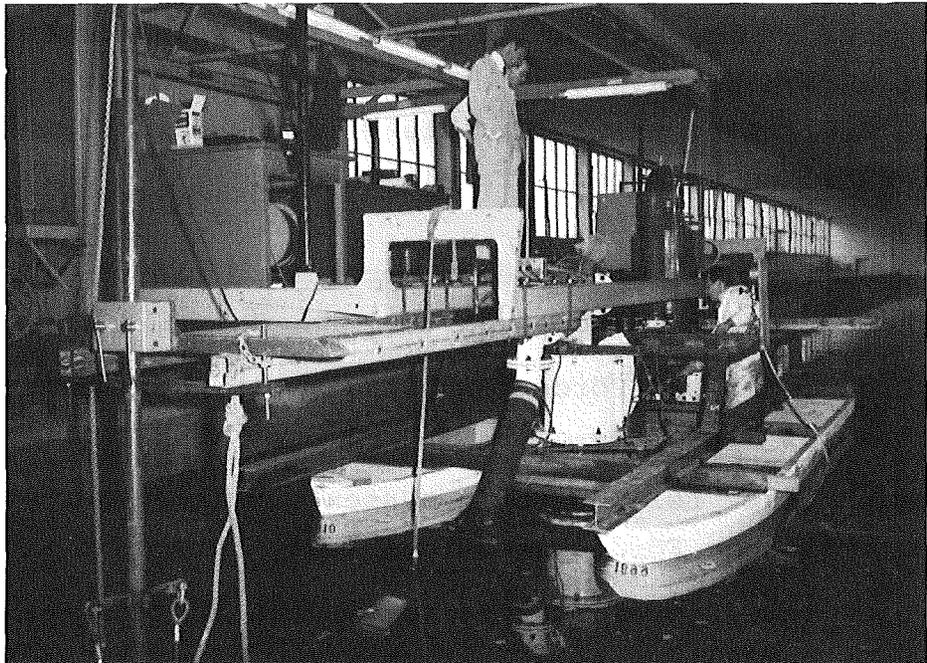


Bild: GKSS

3.4.2 Schleppversuche im Wasserkanal bei der HSVA Hamburg (Abb.3212.11)

In Zusammenarbeit mit der GKSS Geesthacht wurde ein auf Grund der gewonnenen Erfahrungen verbesserter Prüfkreislauf (Abb. 3212.11) auf ein fahrbares Gestell montiert, so daß das Aufsammeln durch die Düse in der Bewegung simuliert werden konnte (siehe Abb. 3212.12).

Durch den Einbau von einem Filter hinter der Pumpe konnte auf die Förderleistung der Pumpe und den Abscheidegrad des Separators geschlossen werden. Als Testgut dienten Kieselsteine, die entsprechend der Belegungsdichte der Manganknollen auf dem Meeresboden von einem Taucher auf Sand ausgelegt wurden.

Die Schleppgeschwindigkeit wurde zwischen 1 m/sec und 2 m/sec, die Fördergeschwindigkeit zwischen 2 m/sec und 4,2 m/sec variiert.

Es wurden eine von der GKSS entwickelte Düse, die einer üblichen Sandbaggerdüse entspricht, und sieben von der GfK entwickelte Düsen eingesetzt. Zwei der Bauformen arbeiteten zufriedenstellend, so daß aus

diesen eine endgültige Düse konstruiert werden konnte, die nochmals im Watt unter Bedingungen (Schlick und Steine bzw. Kohlen) wie auf dem Meeresboden getestet wurde.

Aufgrund der Differenzdruckmessungen wurde eine hydraulische Leistung (netto) zwischen 0,5 kW und 5,5 kW ermittelt. Der Pumpenmotor wird daher für eine Fördergeschwindigkeit von 4,2 m/sec ausgelegt werden, so daß eine Reserve vorhanden ist.

3.4.3 Wattversuche

Die Aufsammeluntersuchungen wurden mit Versuchen im Watt weitergeführt, um unter möglichst realen Bedingungen die Komponenten des Probenahme-systems zu optimieren.

Der Versuchsaufbau bestand aus den bereits im Schleppkanal getesteten Komponenten, wobei ein neu entwickelter Separator mit Analysengefäß sowie zwei neue Saugköpfe eingesetzt wurden. Das Probennahmesystem war am Bug eines normalerweise für Rammarbeiten verwendeten Schiffes so montiert, daß durch Absenken unter Wasser die Anlage über Absperrventile entlüftet werden konnte (Abb. 3212.13). Der Saugkopf war am beweglichen Rüssel befestigt und wurde seitlich vom Schiff über den Boden gezogen.

Die Versuche fanden im Watt bei Wilhelmshaven statt, da dort der Schlickboden etwa die gleiche Zähigkeit wie das Sediment der Tiefsee hat. Eine Meßstrecke von 10 m Länge und ca. 2 m Breite wurde mit Kieselsteinen der Körnungen 16 - 75 mm so belegt, daß eine Belegungsdichte von ca. 20% angenommen werden konnte. Danach wurde das Schiff mit Hilfe eines an einer Mole befestigten Seiles über die Meßstrecke geschleppt und das Versuchsgut aufgenommen. Es wurden Schleppgeschwindigkeiten von 0,77 m/sec bis 1,43 m/sec erzielt, wobei die Fördergeschwindigkeit von 2,0 m/sec bis 4,0 m/sec geändert wurde. Die Pumpenleistung lag zwischen 0,34 und 5,05 kW, wobei die höhere Leistung vor allem durch den langen Saugrüssel (5 m) und ein Eindringen der Düse in den Schlickboden zustande kam.

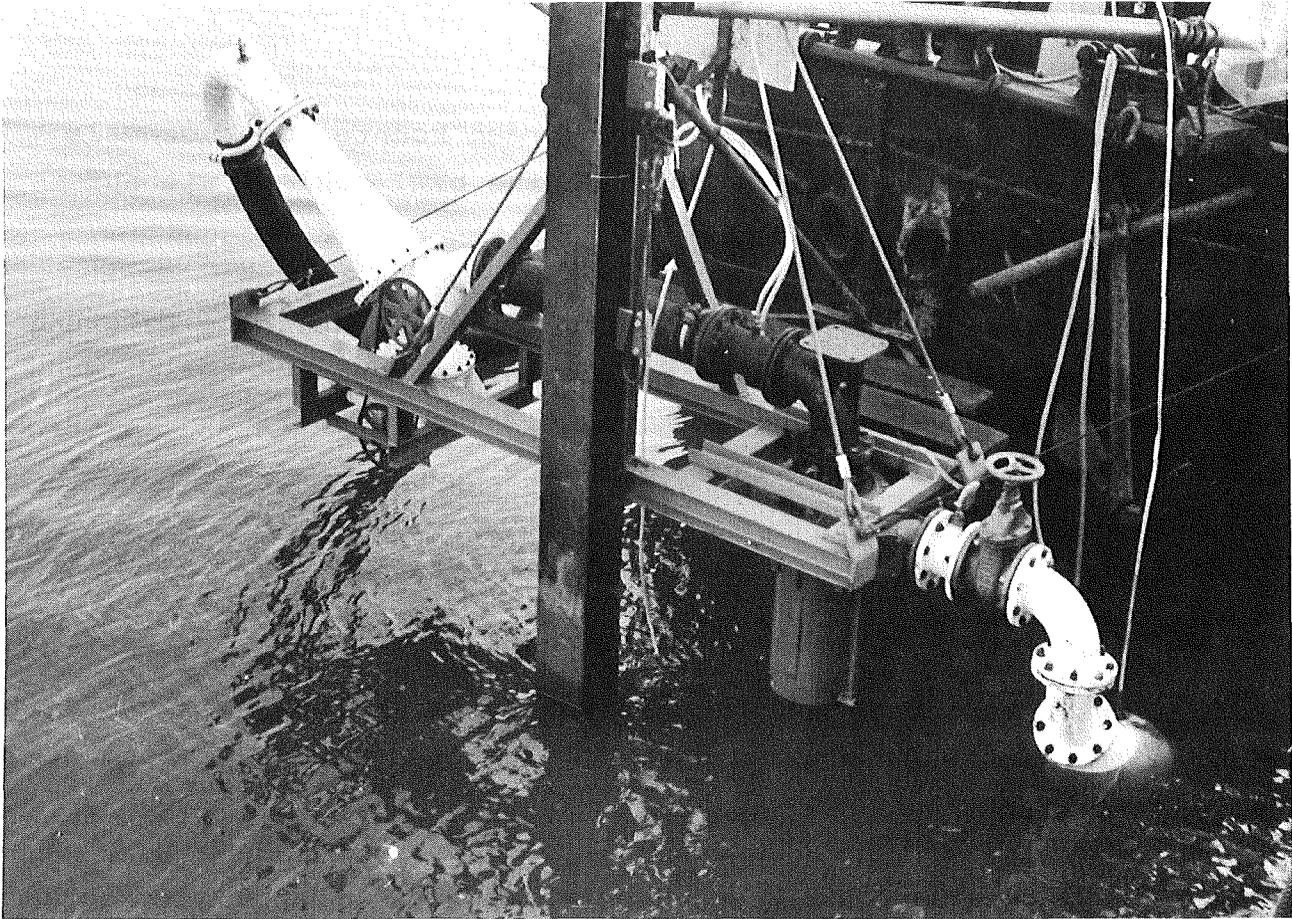


Abb. 3212.13:

Probenahmesystem im Wattversuch

Bild: GKSS

Dieses Eindringen wird beim eigentlichen Versuchsgerät durch Aufhängen der Düse im Schleppgestell vermieden werden können. Der Separator arbeitete erst nach dem Einbau eines Siebes an der Absaugseite zufriedenstellend und konnte dadurch auch die Steine völlig von anhaftendem Schlack befreien.

Auf Grund der aufgesammelten Menge läßt sich ersehen, daß die Sammelzeit zum Füllen des Analysengefäßes bei 20% Belegungsdichte und 1,5 m/sec Schleppgeschwindigkeit etwa 10 sec dauert.

3.4.4 Tiefseemotoren

Tiefseemotoren für den geplanten Einsatzbereich in 6000 m Meerestiefe sind in der Industrie nicht serienmäßig vorhanden und benötigen einen Entwicklungsaufwand. Nachfragen bei den Herstellern wurden durchgeführt, wobei lediglich von seiten der Firma Pleuger, Unterwasserpumpen GmbH, Hamburg, und der Firma Franklin-Electric, Bluffton, USA, Angebote eingingen. Aus technischen und wirtschaftlichen Gründen wurde eine Entwicklung des Pumpen- und des Klappenmotors bei der Firma Pleuger in Angriff genommen.

3.5 Berechnungsstudie zur Kabelauslegung der Fa. Dornier-System

Die Anfang des Jahres in Auftrag gegebene Studie zur Prüfung der Verwendbarkeit des auf dem FS "Valdivia" vorhandenen Kabels für den Einsatz des Versuchsgerätes und zur Ermittlung der Daten eines optimalen Kabels wurde Ende Juni übergeben.

Der Durchmesser eines optimalen Kabels ergibt sich danach zu 26 mm. Das auf dem FS "Valdivia" vorhandene Kabel mit 18,3 mm Durchmesser kann für einen Tiefseeinsatz des Versuchsgerätes verwendet werden.

4. Wirtschaftlichkeitsuntersuchungen

A. Suppan

Für jedes Analysensystem sind neben Aussagekraft und Genauigkeit der Analyse sowie der Handhabbarkeit des Systems die Analysekosten ein wesentlicher Faktor. Um verschiedene Analysenverfahren oder Systeme miteinander vergleichen zu können, ist es daher zweckmäßig, die spezifischen Analysekosten - Kosten pro km^2 explorierter Fläche - zu ermitteln. Deren Abhängigkeit von den physikalischen, technischen und wirtschaftlichen Parametern ist in Abb. 3212.14 dargestellt.

Die Abb. 3212.15 zeigt die graphische Bestimmungsmethode der spezifischen Kosten für ein integriertes Manganknollen-Explorationssystem (vergl. Seite) in Abhängigkeit von der Anzahl der Analysen pro km^2 , der Analysenzeit und der Schiffsgeschwindigkeit; ein quadratisches Meßraaster mit der Kantenlänge $t \cdot v$ wurde vorausgesetzt.

$$K_A = \frac{k \cdot t}{(t \cdot v)^2} \quad 4.1$$

$$k = \frac{\left(\sum \frac{K_{Anl}}{t_{Ab}} + \sum K_W + K_S + K_P \right) \cdot 100}{P_V \cdot 365 \cdot 24 \cdot 60} \quad 4.2$$

$$t = t_s + t_{Aus} + t_A \quad 4.3$$

Es bedeuten

K_A (DM/km ²)	=	spezifische Analysenkosten
k (DM/min)	=	Gesamtkosten pro Minute Einsatzdauer
t (min)	=	Zyklusdauer
v (km/min)	=	Schiffsgeschwindigkeit
		v (km/min) $\approx \frac{V$ (kn) 1080
K_{Anl} (DM)	=	Investitionskosten der Systemkomponenten
t_{Ab} (a)	=	Abschreibungsdauer der Systemkomponenten
K_W (DM/a)	=	Wartungs- und Installationskosten pro Jahr
K_S (DM/a)	=	jährliche Schiffskosten
K_P (DM/a)	=	jährliche Personalkosten (nur spez.Laborpers.)
P_V (%)	=	Verfügbarkeit des Systems: ca. 65%
t_s (min)	=	Sammelzeit: 1,1 min
t_{Aus} (min)	=	erforderl. Zeit zum Entleeren des Meßbehälters: 1 min
t_A (min)	=	Analysenzeit: von 5 bis 25 min

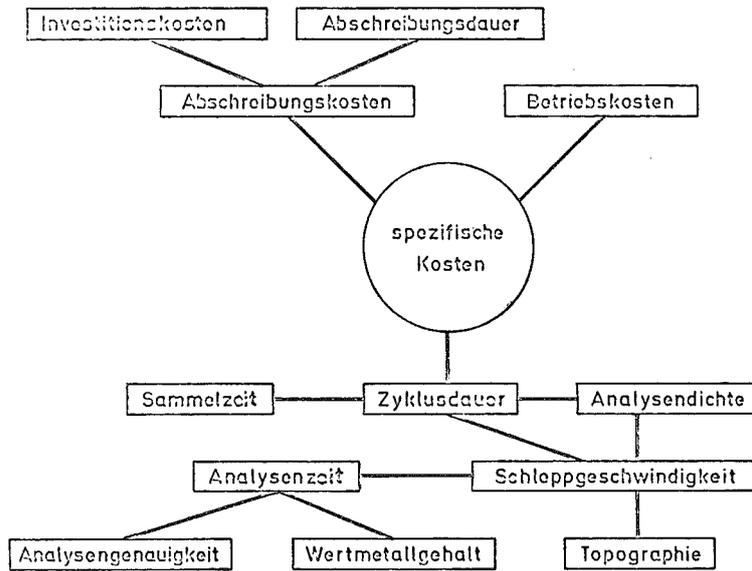


Abb. 3212.14: Abhängigkeit der Kosten

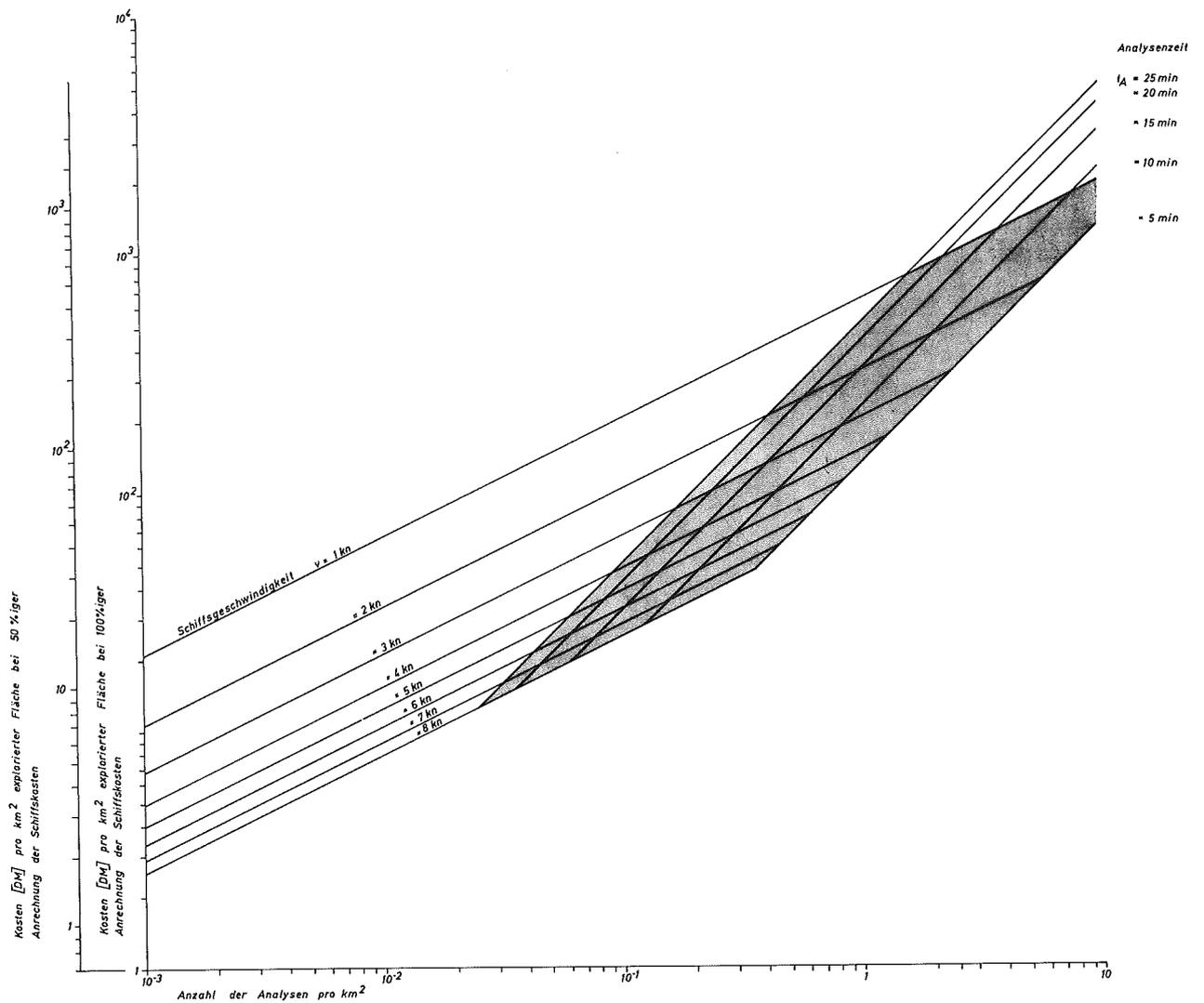


Abb. 3212.15: Spezifische Analysenkosten (DM/km²) für ein integriertes Manganknollen-Explorationssystem.

Tab. 3212.9: Kosten des Manganknollen-Explorations-Systems

Systemkomponente	Lebensdauer (a)	Herstellungskosten (TDM)	Kostenart	Jahreskosten (TDM/a)
Geräteträger	1	920	Abschreibung	920
			Wartung u. Instandhaltung	200
Kabel	0,5	300	Abschreibung	600
Datenverarbeitung	5	200	Abschreibung	40
			Wartung u. Instandhaltung	20
Schiff *) komplett mit Mannschaft			Abschreibung, Wartung u. Instandhaltung, Betriebs- u. Personalkosten	4400
Systembedingtes Personal (2 Akad.)			Personalkosten	200
				6380

*) derzeitige Kosten des FS "Valdivia"

In Tab. 3212.9 sind die der Abschätzung zugrundeliegenden Kosten für ein Manganknollen-Explorations-System zusammengestellt. Als Schiffskosten wurde die derzeitige Jahresmiete des FS "Valdivia" eingesetzt.

Der im Diagramm getönte Bereich zeigt das Gebiet vorzugsweiser Anwendung des Systems. In ihm kann das System ohne Totzeiten zwischen den Arbeitszyklen arbeiten. Die Fahrgeschwindigkeit wird hier von der geforderten Analysendichte, der Analysengenauigkeit und der Topographie bestimmt. Unterhalb dieses Bereiches zu arbeiten ist wegen des zu großen Meßfehlers nicht sinnvoll. Oberhalb dieses Bereiches entstehen Totzeiten zwischen den Arbeitszyklen, was zur Steigerung der spezifischen Kosten führt, sofern man nicht die Entfernung zwischen den Meßpunkten mit einer größeren Geschwindigkeit überwindet, als für die Probenahme nötig ist.

3220 ERZAUFBEREITUNG

Die Rentabilität der Erzaufbereitung ist in hohem Maße von der Analytik abhängig. Die eingeführten Verfahren erfassen nur geringe Probenmengen, sind daher oft nicht repräsentativ und erfordern eine längere Zeit bis zum Vorliegen des Analysenergebnisses. Die Austragungsverluste liegen entsprechend hoch. On-line Verfahren auf der Basis kern-technischer Methoden haben hier ein beträchtliches Anwendungspotential und versprechen eine Erhöhung der Rentabilität.

3221 PROZESSKONTROLLE

H. Braun

Ziel dieses Vorhaben ist die Entwicklung und der Einsatz von on-line Aktivierungsverfahren und nichtdispersiver Röntgenfluoreszenz in der Aufbereitungstechnik sowie die technische Entwicklung entsprechender Geräte.

Das Programm für 1973 sah vor, die Grundlagen für die on-line Aktivierungsanalyse mittels ^{252}Cf zu erarbeiten.

Chemische Grundlagen und Modellversuche

1. Funktionsschema der Bestrahlungsanlage (Loop)

Zur Entwicklung des Verfahrens und seiner Einführung in die Industrie wurde ein Loop gebaut, das erstmals in Deutschland die kontinuierliche Bestrahlung von Produktströmen mit einer 1 mg $^{252}\text{Californium}$ -Quelle ermöglicht. Das Funktionsschema der Anlage ist in Abb. 3221.1 dargestellt.

Ein Teil des Produktstroms wird mittels einer Pumpe durch ein Rohrleitungssystem befördert. Dieses wird in der Regel als Bypass ausgebildet sein. Der Materialstrom fließt zunächst durch einen Durchflußmesser und anschließend durch einen Dichtemesser. Durchflußmenge und Dichte des Materials haben direkten Einfluß auf die erzeugte Aktivität und müssen deshalb überwacht werden. Die Durchflußmessung geschieht induktiv, die Dichtemessung über eine γ -Strahlen-Absorption.

Die Rohrleitung mündet dann in die Aktivierungszelle, in deren Mitte sich die Californium-Quelle befindet, und in die Meßzelle mit einem NaJ-Detektor. Zwischen Aktivierungs- und Meßzelle ist eine Verzögerungsstrecke eingebaut, die wahlweise benutzt wird, wenn kurzlebige Aktivitäten vor dem Messen abklingen sollen.

Im Idealfall ist das Loop offen, d.h. die aktivierte und gemessene Probe geht unmittelbar wieder in den Produktstrom zurück. Zwei Sonderfälle werden berücksichtigt:

- 1) Die Aktivität ist beim einmaligen Durchgang zu schwach. Dann wird zyklisch gefahren, d.h. die Probelösung fließt einige Male durch das dann geschlossene Loop.
- 2) Kurzlebige Aktivitäten stören die Messung. Dann wird die Probelösung nach dem Aktivieren ebenfalls im Loop umgepumpt, aber unter Umgehung der Aktivierungszelle.

Prozeßanalyse mit Californium-252

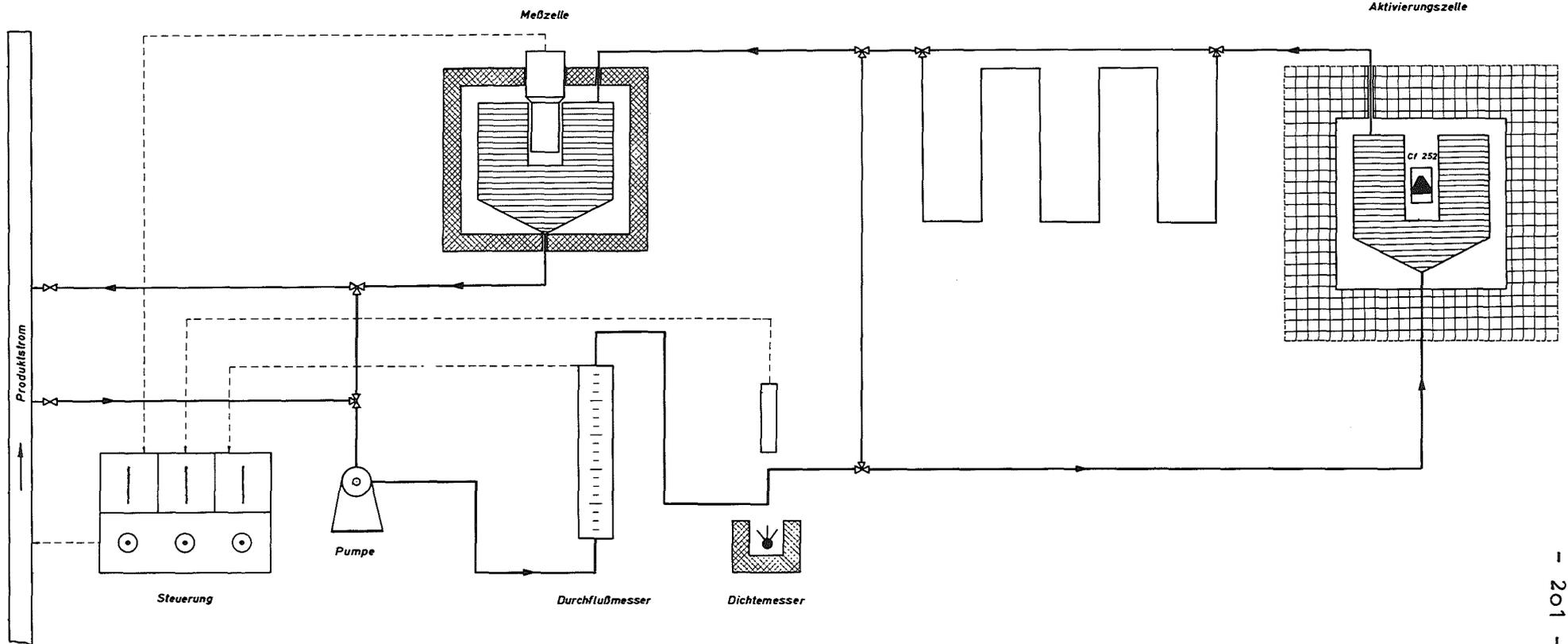


Abb. 3221.1: ^{252}Cf -Bestrahlungsloop

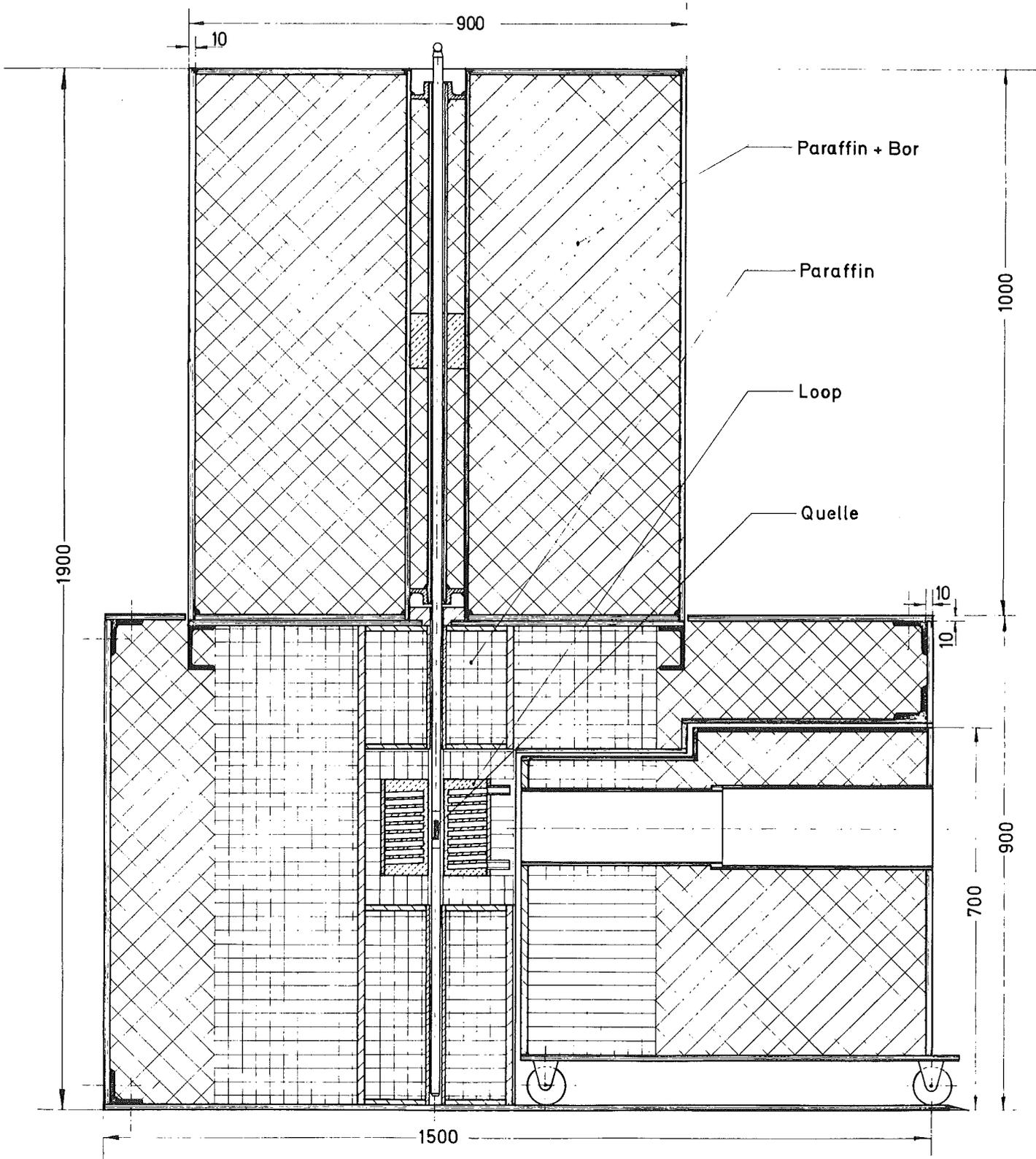


Abb. 3221.2: Bestrahlungsanlage (Loop)

2. Komponenten des Loops

Die folgenden Bilder zeigen das Loopsystem für Flüssigkeiten, Abb. 3221.2 zunächst schematisch die Californium-Bestrahlungsanlage. Sie besteht aus einem Stahlkasten, der mit Paraffin-Steinen gefüllt ist und der die Aktivierungszelle enthält. Darüber befindet sich der Californium-Tank, der als Transportbehälter ausgebildet ist. Mit Hilfe einer Schubstange wird die Californium-Quelle von oben in die Aktivierungszelle abgesenkt. Zur optimalen Auslegung des Bestrahlungsendstückes des Loops mit der Aktivierungszelle konnte auf Erfahrungen mit der Rohrpostanlage zurückgegriffen werden.

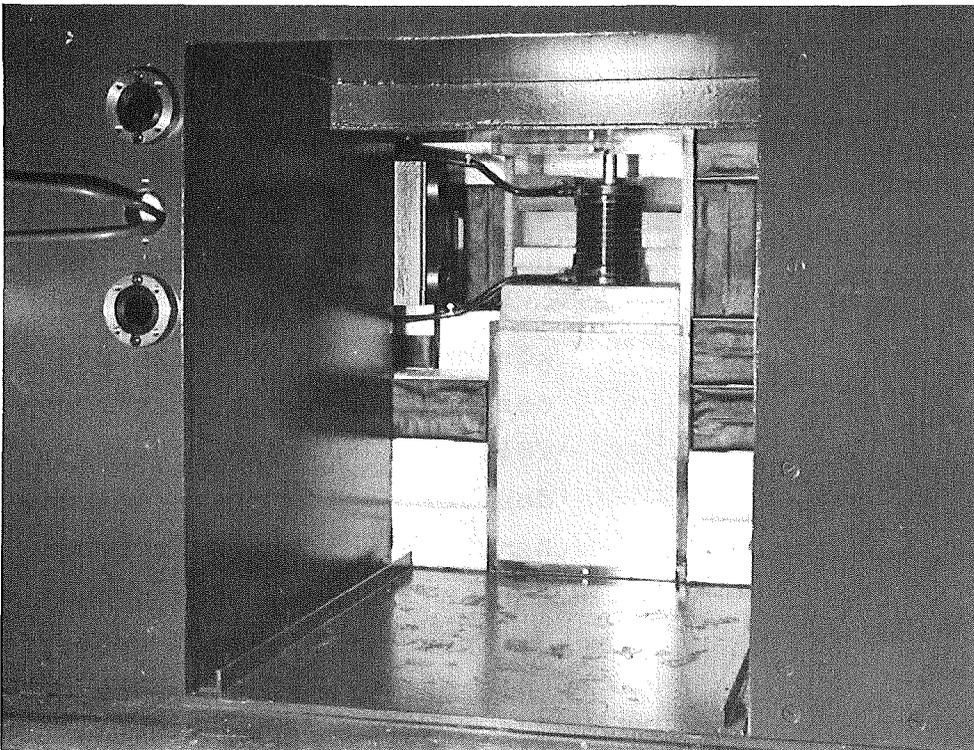


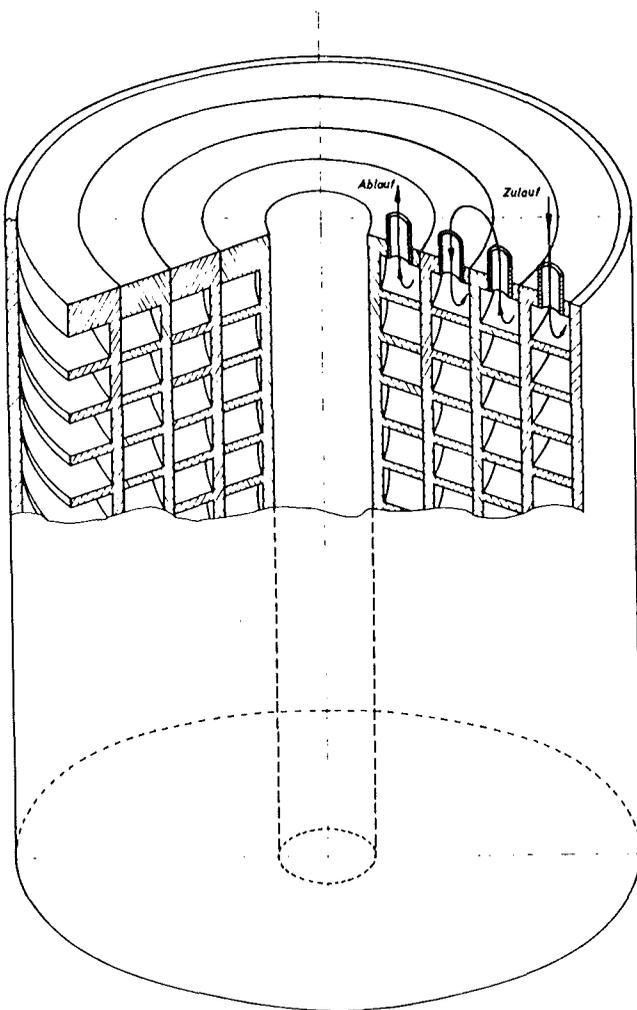
Abb. 3221.3:

Blick in die Bestrahlungskammer

Abb. 3221.3 zeigt bei geöffneter Abschirmung die Bestrahlungskammer. An der Seite sieht man zwei Flansche zum Anschluß der Leitungen für das geplante Schlammloop. Die Paraffinabschirmung (bzw. die Bleiabschirmung um die Meßzelle) ist so konstruiert, daß die Zellen leicht ausgewechselt werden können. Dadurch können Zellen verschiedener Form und verschiedenen Volumens eingesetzt werden. Als solche wurden zuerst

Hohlzylinder verwendet, in die die Californium-Schubstange wie in ein Bohrloch eintauchte. Es kommt jedoch sehr darauf an, daß die Verweilzeit der Probelösung genau definiert ist, um reproduzierbare Bestrahlungszeiten zu bekommen. Die Zylinderkonstruktion erwies sich dabei nicht als sehr geeignet. Entsprechendes gilt für die Meßzelle. Die Verwendung von Schläuchen, die mehrfach übereinander gewickelt waren, führte zur Volumenverengung des Schlauches und damit zu unerwünschter Druckerhöhung. Jetzt werden für Aktivierungs- und Meßzellen Spiralen aus einem Polyäthylen- oder Plexiglaszylinder herausgefräst. Dabei sind jeweils mehrere solcher Einzelzylinder zu einem Zellenblock zusammengefaßt, wie in Abb. 3221.4 schematisch dargestellt.

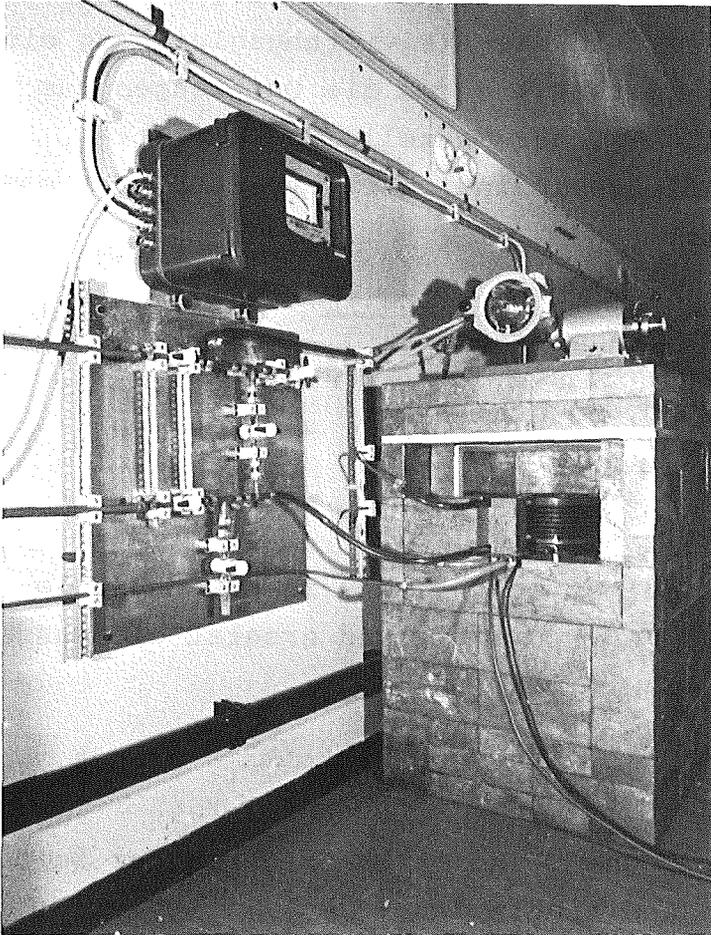
Abb. 3221.4: Aktivierungszelle



In der Mitte befindet sich die Bohrung für die Californium-Quelle bzw. den Detektor. Je nachdem welche der Einzelzellen man miteinander verbindet, bekommt man verschiedene Aktivierungs- bzw. Meßvolumina. Die übrigen Zellen können zur Thermalisierung der Neutronen mit Wasser gefüllt werden. Diese Bauart der Zellen ist jetzt günstig hinsichtlich einer störungsfreien Strömung, der genau definierten Ein- und Austrittszeit der Probelösung und des genau definierten Volumens. Die Konstruktion erlaubt auch das gleichzeitige Bestrahlen von mehreren Probelösungen. Die nächste Abb. 3221.5 zeigt einen Blick in die Meßkammer mit der Meßzelle. Es wurde bewußt auf die Verwendung eines Halbleiterdetektors verzichtet, um das Analysensystem

Abb. 3221.5:

Blick in die Meßkammer



möglichst einfach und kostensparend zu gestalten. Ge(Li)-Detektoren lassen sich wegen der Notwendigkeit des dauernden Kühlens kaum in der Industrie einsetzen. Solange nur wenige Komponenten im Produktstrom zu erfassen sind, sind sie wegen ihrer geringen Ansprechwahrscheinlichkeit auch sinnlos. Abb. 3221.6 schließlich zeigt das gesamte Loop-system mit den beiden Schalttafeln für die Verzweigung der Rohrleitungen.

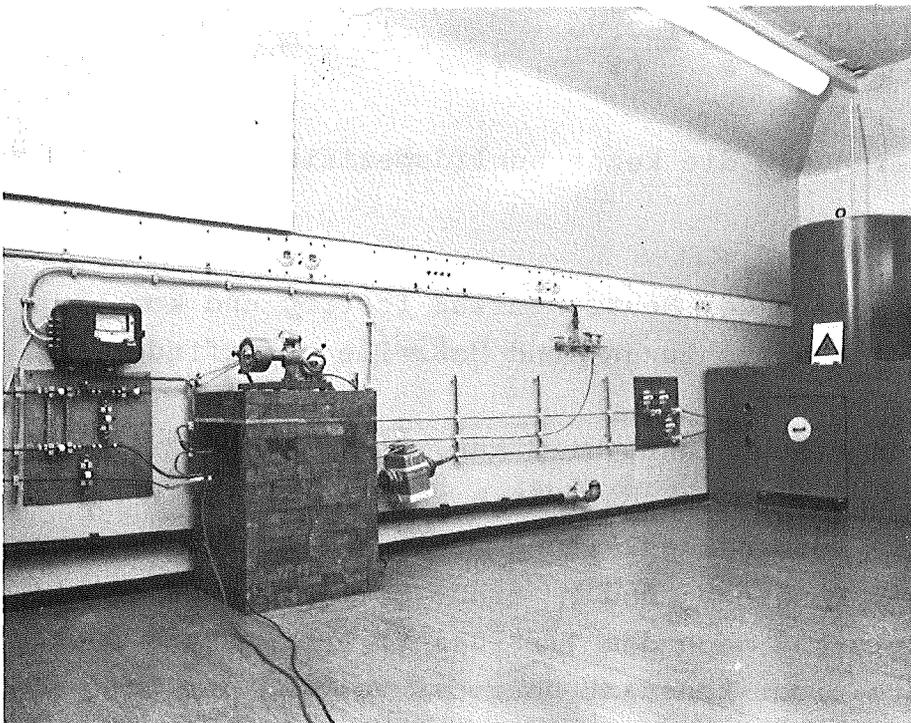


Abb. 3221.6:

^{252}Cf -Loop-system

3. Aktivierungsgleichung

Der wichtigste Parameter beim Fahren eines Loops ist die Durchflußgeschwindigkeit Q . Diese geht direkt in die Aktivierungsgleichung ein, wenn man Bestrahlungs-, Meß- und Wartezeit durch die Quotienten aus den Volumina der Bestrahlungszelle V_b , der Meßzelle V_m , der Verbindungsleitung V_w und der Durchflußgeschwindigkeit ersetzt. Geht man von der Aktivierungsgleichung aus:

$$A = \frac{\phi \sigma N_L m f}{M} \cdot \left(1 - e^{-\frac{\ln 2 \cdot t_b}{T}}\right) \cdot e^{-\frac{\ln 2 \cdot t_w}{T}} \quad 3.1$$

und setzt $\phi \sigma N_L f / M = K$ und $t_i = V_i / Q$, so erhält man

$$A = K m \cdot \left(1 - e^{-\frac{\ln 2 \cdot V_b}{QT}}\right) \cdot e^{-\frac{\ln 2 \cdot V_w}{QT}} \quad 3.2$$

Hierbei wurde ein Volumenelement δV betrachtet, das in die Meßzelle eintritt. Integriert man über das Meßvolumen V_m und ersetzt die Masse m durch die Konzentration c , so erhält man

$$A = \frac{K c Q T}{\ln 2} \cdot \left(1 - e^{-\frac{\ln 2 \cdot V_b}{QT}}\right) \cdot e^{-\frac{\ln 2 \cdot V_w}{QT}} \cdot \left(1 - e^{-\frac{\ln 2 \cdot V_m}{QT}}\right) \quad 3.3$$

Hier ist A eine Funktion von V_i , Q und T und unabhängig von der Zeit. Man kann durch $Kc/\ln 2$ dividieren und erhält dann:

$$A' = Q T \cdot \left(1 - e^{-\frac{\ln 2 \cdot V_b}{QT}}\right) \cdot e^{-\frac{\ln 2 \cdot V_w}{QT}} \cdot \left(1 - e^{-\frac{\ln 2 \cdot V_m}{QT}}\right) \quad 3.4$$

Jetzt hat man eine Gleichung, die keine nuklidspezifischen Größen mehr enthält.

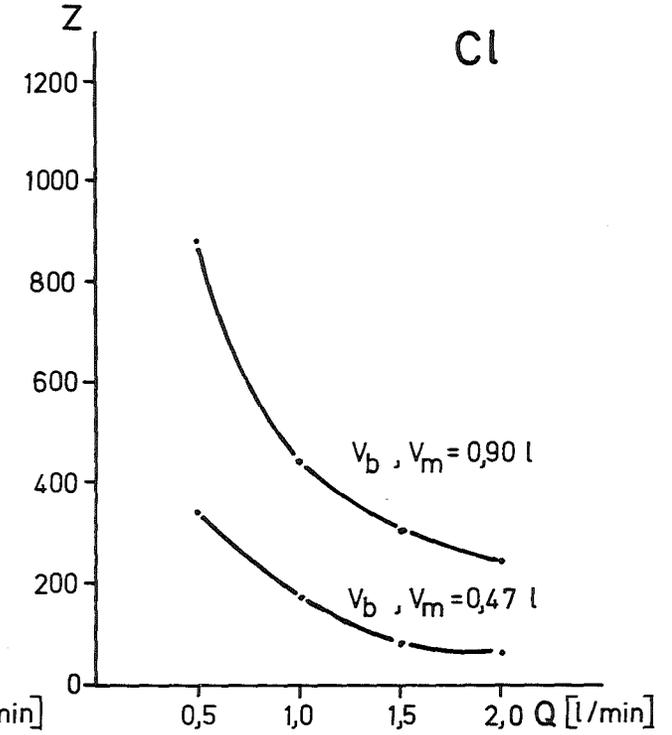
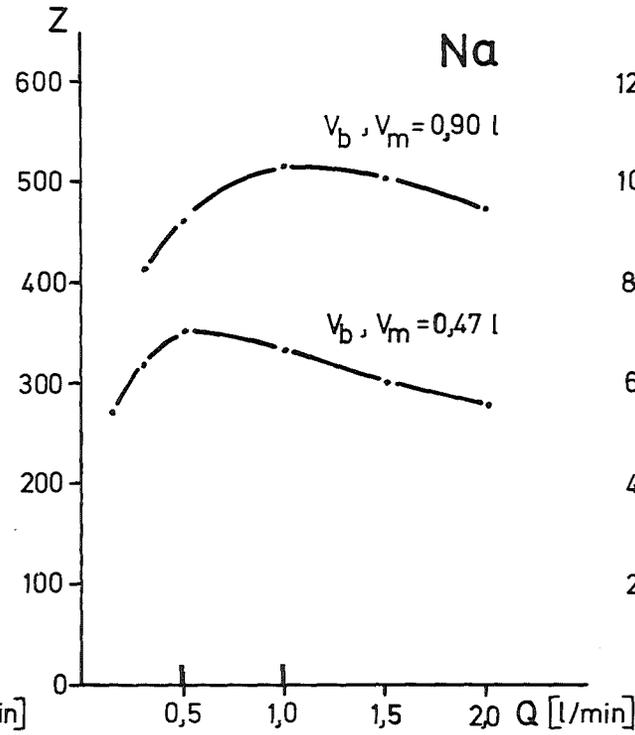
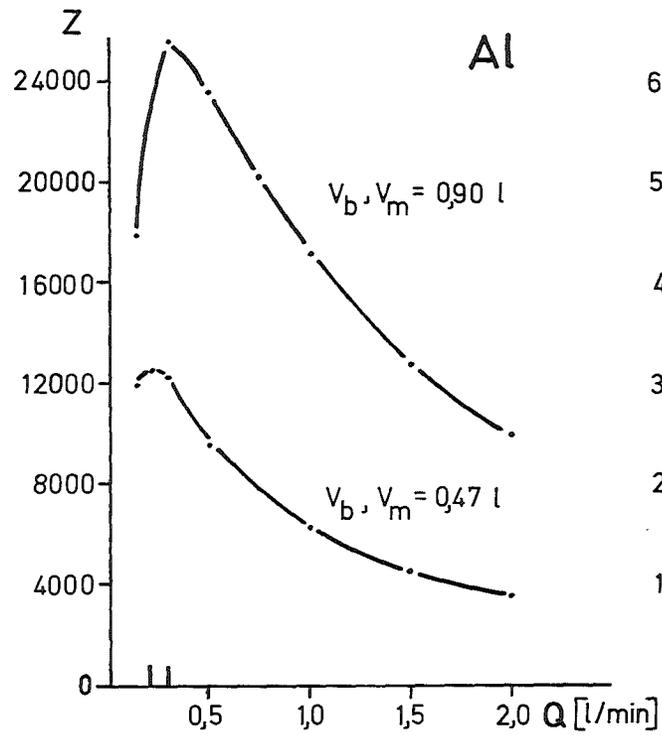
Gleichung 3.4 gilt nur, wenn der Neutronenfluß isotrop und konstant ist und keine Vermischung in Bestrahlungs- und Meßzelle stattfindet.

Wenn man ein Bestrahlungsloop plant, wird man, damit A groß wird, V_b und V_m möglichst groß und V_w möglichst klein machen. Um letzteres zu erreichen, wird man die Verbindungsleitung möglichst gering im Querschnitt wählen. Dagegen können V_m und V_b nicht beliebig groß sein, weil die gemessene Aktivität nach dem $1/r^2$ -Gesetz abnimmt und auch die Neutronenflußdichte nicht konstant über das Volumen der Bestrahlungszelle ist. Das war aber die Voraussetzung für die Gültigkeit

von Gleichung (4). Es wird also ein optimales Volumen geben, das man experimentell ermitteln muß. Ist die Flußdichteverteilung bekannt, kann man es auch rechnerisch erhalten. Solche Rechnungen werden noch durchgeführt.

4. Experimentelle Ergebnisse

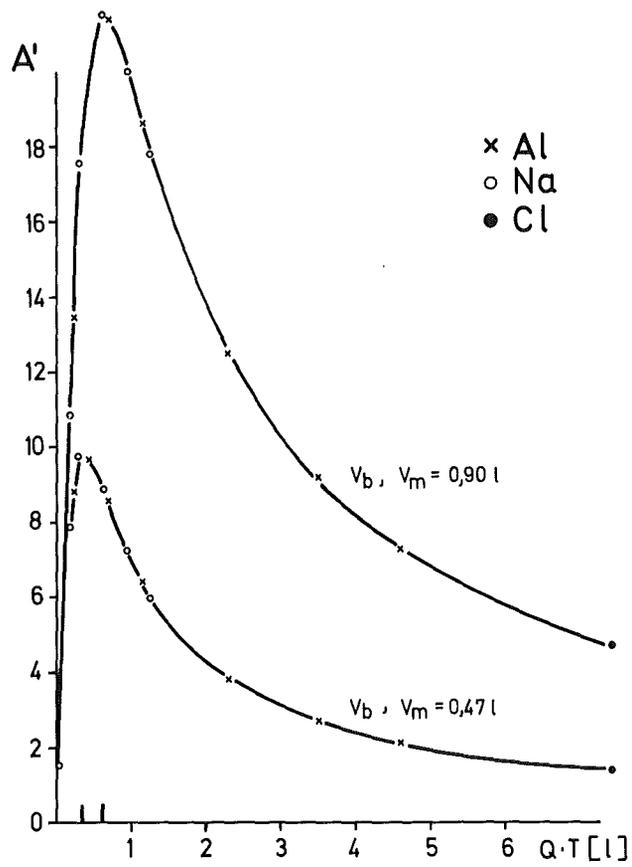
Die bisherigen Experimente hatten zum Ziel, die optimale Durchflußgeschwindigkeit, also diejenige Durchflußgeschwindigkeit, die maximale Aktivität erzeugt, für verschiedene Halbwertszeiten T und zwei vorgegebene, verschiedene V_b und V_m zu bestimmen. Wir wählten das System Aluminium-Natrium-Chlor, und zwar einprozentige Lösungen eines Salzes, und bestimmten die Nuklide ^{28}Al , ^{23}Ne und ^{38}Cl mit den Halbwertszeiten 2,3 min, 38 sec und 37,3 min. Die Volumina der Bestrahlungs- und Meßzellen betragen jeweils 0,47 oder 0,90 l, das Volumen der Verbindungsleitung war immer 0,13 l. Die Experimente zeigen, daß die erhaltenen maximalen Impulszahlen eine Funktion von Q sind. Diese Zusammenhänge für alle 3 Nuklide und beide Volumina sind in Abb. 3221.7 gezeichnet. Man erhält als Ergebnis: Für ein gegebenes Loopsystem, also bei konstanten V_b , V_m , V_w , gibt es eine optimale Durchflußgeschwindigkeit, die maximale Aktivität liefert. Sie ist nur von der Halbwertszeit abhängig. Sie beträgt für Aluminium 0,22 bzw. 0,3 l/min und für Natrium 0,5 bzw. 1 l/min. Für Chlor wurde das Maximum nicht erreicht, weil die Durchflußgeschwindigkeit dann zu gering ist. Die optimale Durchflußgeschwindigkeit läßt sich auch rechnerisch erhalten, wenn man die Aktivierungsgleichung anwendet und die erste Ableitung $dA/dQ = 0$ setzt. In der letzten Abb. 3221.8 sind die maximalen Impulszahlen als Funktion von $Q \cdot T$ gezeichnet. Sie sind damit jetzt unabhängig von T ; also sind die Kurven für alle Nuklide identisch. So aufgetragen, erhält man als Ergebnis: Ein gegebenes Loopsystem läßt sich durch einen Wert $Q_{\text{opt}} \cdot T$ charakterisieren, der für alle Nuklide gleich und konstant ist. Er beträgt für das kleine Loop 0,35 l, für das große Loop 0,60 l. Mit dem einmal experimentell bestimmten Wert $Q_{\text{opt}} \cdot T$ hat man eine Größe in der Hand, aus der man einfach durch Division durch die Halbwertszeit für jedes beliebige Nuklid die optimale Durchflußgeschwindigkeit erhalten kann.



Kleines Loop $Q_{opt} = 0,22$ l/min
Großes Loop $Q_{opt} = 0,30$ l/min

$Q_{opt} = 0,5$ l/min
 $Q_{opt} = 1,0$ l/min

Abb. 3221.7: $Z = f(Q)$ für verschiedene T und V_b, V_m



Kleines Loop $Q_{opt} \cdot T = 0,35$ l

Großes Loop $Q_{opt} \cdot T = 0,60$ l

Abb. 3221.8: $A = f(Q \cdot T)$ für verschiedene V_b, V_m

3230 MESSDATENVERARBEITUNG

Ziel des Vorhabens ist die Entwicklung von Software zur Auswertung von Spektren der Neutronenaktivierungsanalyse und prompten (n, γ) Spektroskopie sowie die Interpretation der ausgewerteten Spektren mittels kleinen Prozeßrechnern. Die große Anzahl der eine Spektrumsinterpretation bestimmenden Parameter (vergl. Seite 218) macht diese Entwicklung notwendig.

Das Programm für 1973 sah vor, das Angebot an Soft- und Hardware zu prüfen. Desweiteren sollte mit der Ausarbeitung des Peakauswerteprogrammes begonnen und ein Ansatz zur Spektreninterpretation gemacht werden.

1. Spektrumsanalyse

I. Erbacher

Die on-line Analyse von γ -Spektren mittels Kleinrechnern in der geforderten Universalität macht die Erarbeitung entsprechender Programme notwendig. Die Analyse eines Spektrums besteht aus den Schritten

- Peakauswertung und
- Vergleich mit Radionuklidkatalog.

Das Resultat besteht aus der Angabe der

- Radionuklide
- Nettozählraten je Nuklid
- rel. Fehler der Nettozählraten,

die dann mit Interpretationsprogrammen weiterverarbeitet werden müssen (vergl. Seite 218). Abbildung 3230.1 zeigt ein vereinfachtes Flußdiagramm der Spektrumsanalyse.

1.1 Peakauswertung

Sie ist der erste Schritt der Auswertung nach Aufnahme eines Spektrums. Das Ergebnis ist

- die Peaklage
- die Peakinhalte

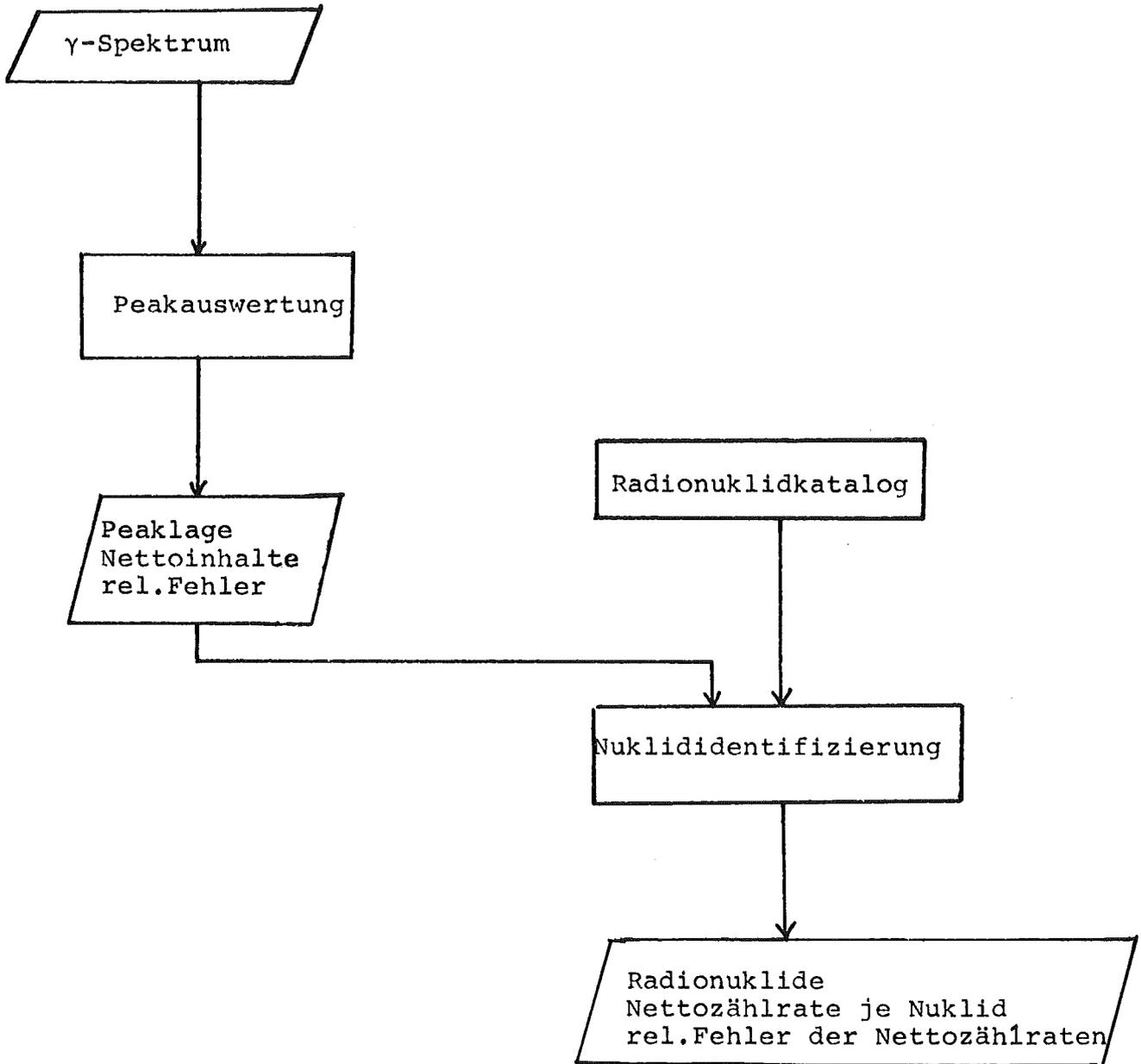
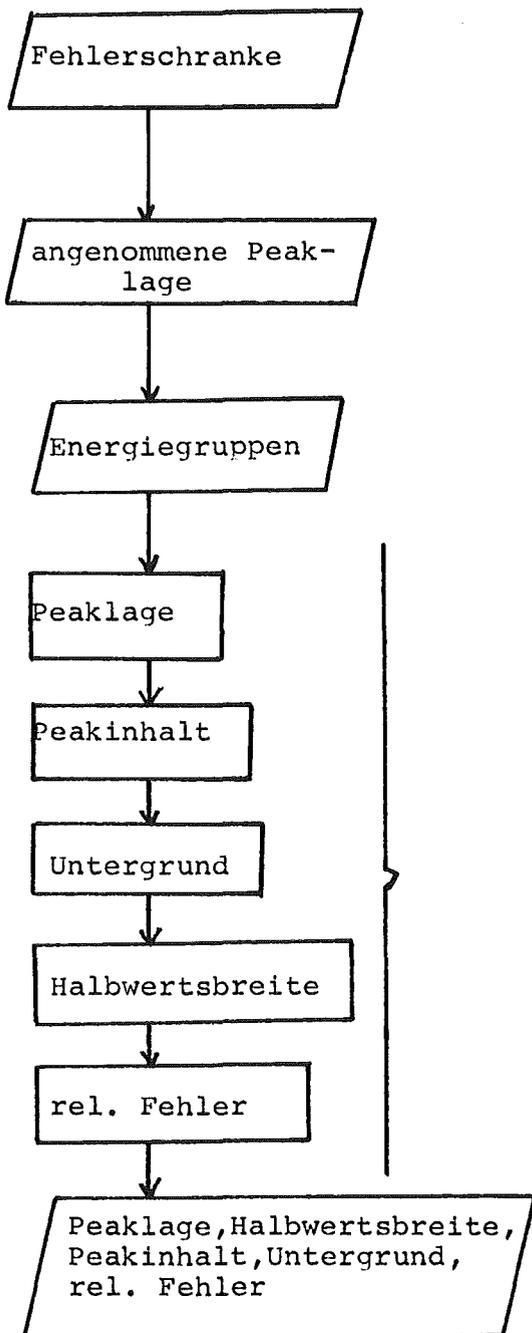


Abb. 3230.1: Flußdiagramm Spektrumsanalyse

- der Untergrund
- die Halbwertsbreite
- die rel. Fehler der Peakinhalte.

Abb. 3230.2 zeigt ein vereinfachtes Flußdiagramm des Peakauswerteprogrammes.



Mit der Fehlerschranke legt der Benutzer fest, wie groß der rel. Fehler des Peakinhalts sein darf, um den Peak noch als solchen gelten zu lassen.

Zur Bestimmung der echten Peaklage ist es notwendig, daß vom Benutzer eine angenommene Peaklage eingegeben wird.

Das vollständige Spektrum kann im Rechner nicht auf einmal abgespeichert werden. Es werden daher, entsprechend der angenommenen Peaklage Energiegruppen gebildet.

Die Peaklage wird mit einem Iterationsverfahren bestimmt.

Berechnung nach üblichen mathematischen Verfahren.

1.2 Radionuklidkatalog

Die Zuordnung der Energie zu einem Radionuklid setzt einen abgespeicherten Radionuklidkatalog voraus. Dieser wird erstellt aus zwei Programmen, wovon das erste die Nuklide mit Ordnungs- und Massenzahl, ihren Halbwertszeiten, Gammaenergien mit Häufigkeiten, Röntgenquanten und Tochternukliden auf einen Bandspeicher bringt. Das zweite sortiert aus diesem Teil die Energien aus und schreibt sie in steigender Reihenfolge mit der jeweiligen Ordnungs- und Massenzahl als zweiten Block auf Magnetband.

Der 1. File auf dem Magnetband besteht aus so vielen Records wie Nuklide im Katalog erwünscht sind. Die Records sind alle gleich aufgebaut, so daß es möglich ist, einzelne Records zu löschen bzw. zu überschreiben.

Der 2. File wird vom "Sortierprogramm" erstellt. Er besteht aus so vielen Records wie der 1. File Energien hat. Die Records bestehen aus zwei Zeichen, Energie und Nuklidbezeichnung.

Der Speicherplatzbedarf des Sortierprogramms kann dem jeweils benutzten Rechner angepaßt werden.

Das Programm wurde auf einem Rechner mit 16K Byte und mit 10 Nukliden, die insgesamt etwa 35 Energien haben, ausgetestet.

Die Flußdiagramme beider Programme zeigen die Abb. 3230.3 und 4.

Flußdiagramm Erstellen des Radionuklidkatalogs

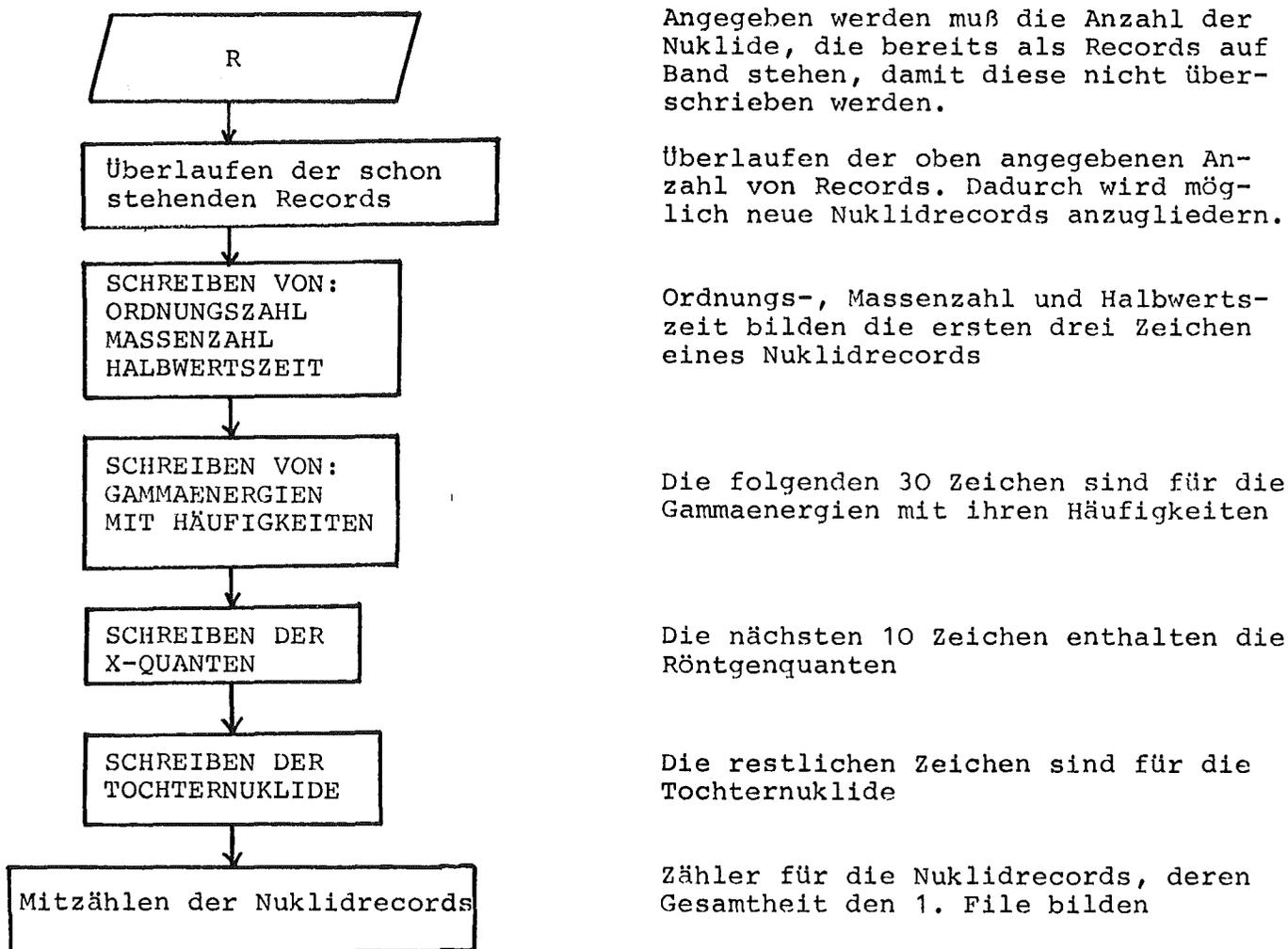


Abb. 3230.3: Flußdiagramm Radionuklidkatalog

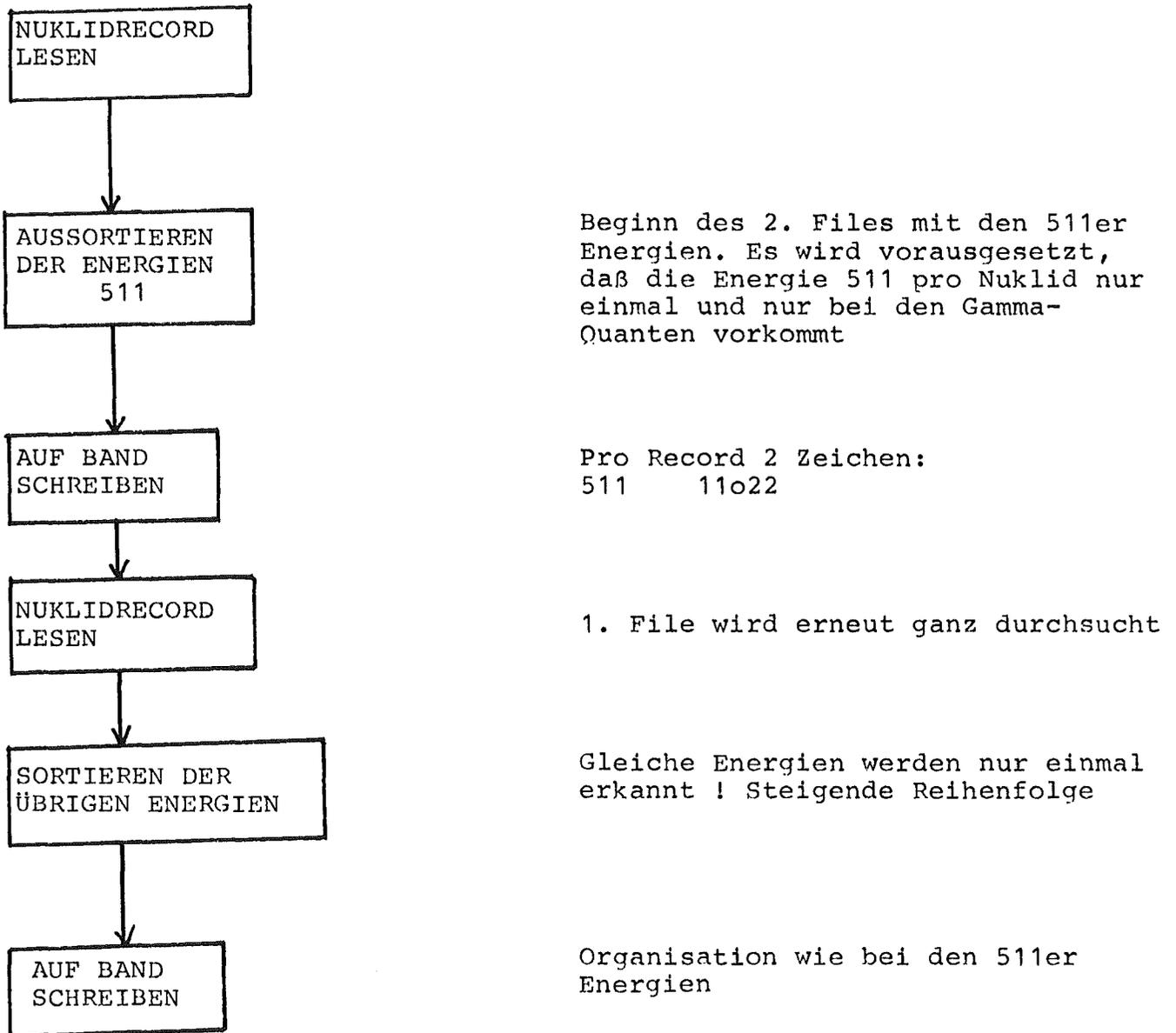


Abb. 3230.4: Flußdiagramm Sortieren

1.3 Nuklididentifizierung

Mit Hilfe dieses Programmes werden die Daten der Peakwertung und des Radionuklidkatalogs verglichen mit dem Ziel, die im Spektrum vorkommenden Radionuklide zu identifizieren. Die Struktur des Programms ist so gehalten, daß die Programmteile mit Mengen- und Fehlerberechnungen leicht eingebaut werden können, sobald ein überarbeitetes Peakwertprogramm vollständig vorliegt. Abbildung 3230.5 zeigt ein vereinfachtes Flußdiagramm.

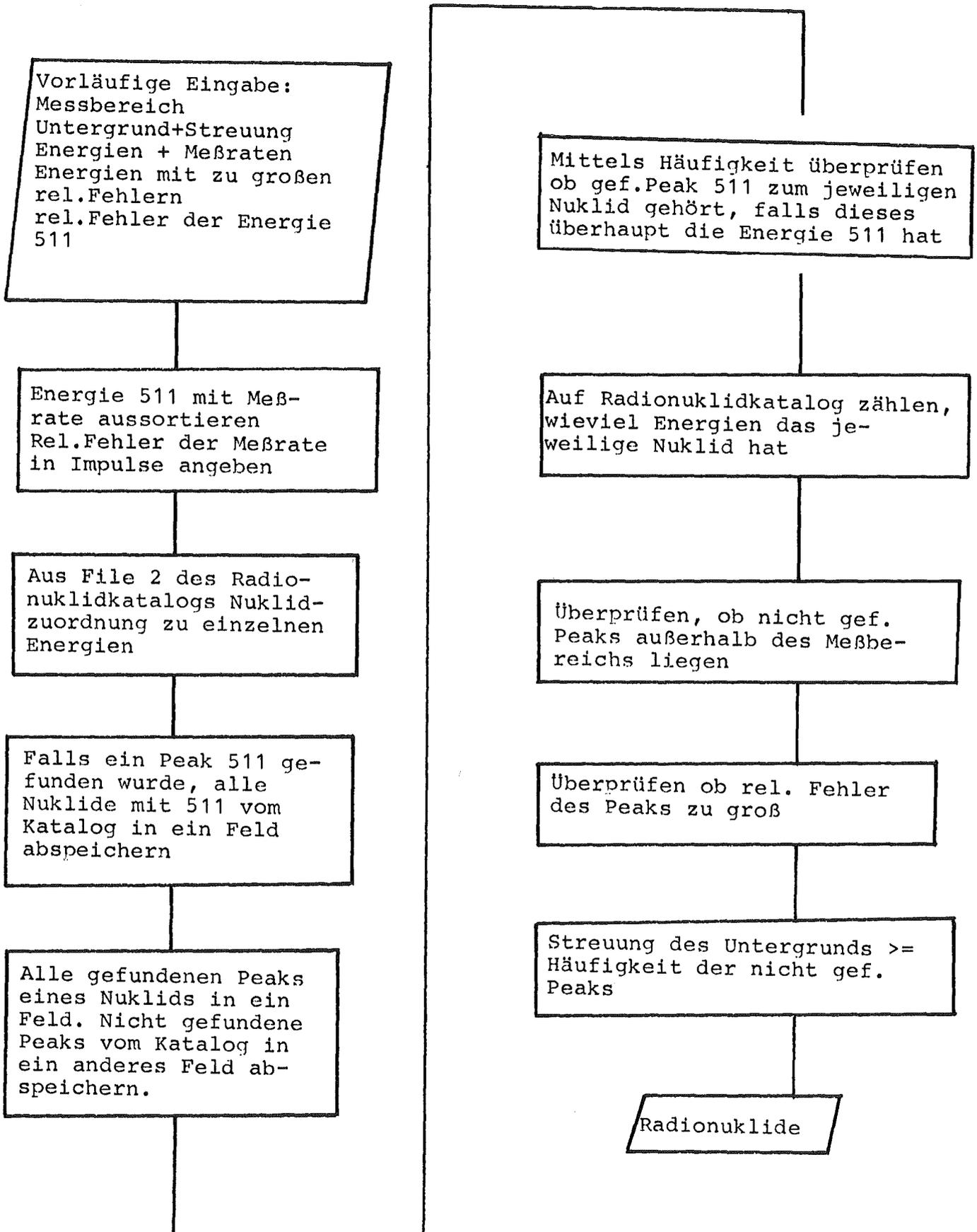


Abb. 3230.5: Flußdiagramm Nuklididentifizierung

2. Spektrumsinterpretation

I. Erbacher, U. Fanger, H. Würz

Nach der Zuordnung der Linien zu den betreffenden Elementen beginnt die Interpretationsphase, bei der die Nettopeakinhalte P einer Linie der Konzentration dieses Elementes zugeordnet wird. Diese Zuordnung geschieht wegen des direkten Zugangs zu gewünschter Information auf Grund einer einfacheren Datenhandhabung in zwei Schritten. Zunächst wird die Teilchendichte N des Elementes, dessen Konzentration c bestimmt werden soll, ermittelt. Daraus wird dann die Konzentration c bestimmt gemäß

$$N = \frac{L}{A} \rho c \quad 2.1$$

Dabei bedeuten:

- A Atomgewicht des nachzuweisenden Elements
- L Loschmidtzahl
- ρ Materialdichte
- N Elementteilchendichte pro cm^3
- c Elementkonzentration in Gewichtprozent

Im Falle der Prospektion mittels in-situ Analysen mit Neutronenbohrlochsonden, liegt neutronenphysikalisch gesehen, eine sehr komplexe Matrix vor. Gleichung 2.1 geht damit über in

$$\frac{P^M}{\eta^M \Gamma_\gamma K_\sigma K_{ao} \phi_2^M} = \alpha \frac{L}{A} \rho c \left[\frac{\sqrt{\pi}}{2} K_{th}^R + \frac{\phi_2^M}{\phi_2^M} (0,68 + f_a^R \frac{I_O^K}{\sigma_{ao}^K} K_{epi}^R) \right] \quad 2.2$$

ANALYSENSERVICE

Ziel des Vorhabens ist, Verfahren zur Bestimmung von Elementkonzentrationen, Isotopenzusammensetzungen und Verunreinigungen zu erarbeiten und Analysen im Rahmen der Projektvorhaben durchzuführen.

Das Programm 1973 sah vor, eine Reihe von N_p -Kleinproben auf ihren Gehalt an ^{236}Pu zu analysieren sowie Kontrollanalysen an bestrahltem ^{241}Am und an gekauftem ^{238}Pu durchzuführen. Desweiteren sollten mehrere geologische Proben im Rahmen der Vorhaben 3211 und 3212 untersucht werden.

1. Gammaskpektrometrische Untersuchungen an ^{238}Pu -Proben

E. Gantner, M. Mostafa

1.1 Meßbedingungen

Die Messungen erfolgten mit einem Ge(Li)-Detektor der Fa. Getac, der zur Reduktion des Untergrunds in einer Bleikammer (5 cm Pb) untergebracht ist. Zur Aufnahme der γ -Spektren (erfaßter Energiebereich: bis 4 MeV) diente ein 4 K-Analysator der Fa. Wenzel. Gemessen wurde jeweils 800 min lang mit einem 5 mm starken Bleiabsorber vor dem Detektor zur Reduktion der stark intensiven Pu-238- γ -Strahlung unterhalb 150 KeV. Die Herzschrittmacherkapseln wurden in 10 cm Abstand vom Detektor gemessen; für die übrigen Proben betrug der Abstand 15 cm wegen ihres höheren Pu-238-Gehalts.

1.2 Messungen an fertiggestellten Kapseln

Insgesamt wurden die γ -Spektren von 10 gefertigten Kapseln (laufende Nummern zwischen 65 und 76) aufgenommen. Als Vergleichsproben für die Auswertung wurden die als "Standard" dienende Kapsel Nr. 22 sowie eine PuO_2 -Probe bekannten Pu-238-Gehalts mit Sauerstoff natürlicher Isotopenzusammensetzung gemessen.

Kapsel Nr.	mg Pu-238 erwartet	gefunden über 766 KeV-Linie			gefunden über 1001 KeV-Linie		
		Peakfläche (Imp)	mg Pu-238	Abweichung (%)	Peakfläche (Imp)	mg Pu-238	Abweichung (%)
22	178,9	385028	178,9	-	14206	178,9	-
65	175,9	372813	173,3	- 1,5	13762	173,3	- 1,5
67	180,6	367570	170,7	- 5,5	13592	171,2	- 5,2
68	177,3	363880	169,2	- 4,6	13324	167,8	- 5,4
69	179,3	382709	177,8	- 0,8	13970	175,9	- 1,9
70	181,6	387596	180,0	- 0,9	14609	184,0	+ 1,3
72	175,9	379812	176,7	+ 0,4	14349	180,7	+ 2,7
73	177,1	384368	178,5	+ 0,8	14504	182,7	+ 3,2
74	174,3	379389	176,3	+ 1,1	13971	175,9	+ 0,9
75	190,6	417430	194,1	+ 1,8	15074	189,8	- 0,4
76	176,4	380454	177,0	+ 0,3	13877	174,8	- 0,9

Tabelle 1: Ergebnisse der γ -spektrometrischen Pu-238-Bestimmung über die 766 KeV- und 1001 KeV- γ -Linien.

1.2.1 Bestimmung des Pu-238-Gehalts

Zur Bestimmung von Pu-238 auf γ -spektrometrischem Wege eignet sich am besten die 766 KeV-Linie, die mit Abstand die intensivste γ -Linie von Pu-238 im höherenergetischen Bereich ist (Abb. 1). Daneben wurde die Auswertung noch über eine zweite γ -Linie bei 1001 KeV ausgeführt. Die erhaltenen Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Danach ist die Übereinstimmung zwischen dem über die 766 KeV-Linie gefunden und dem erwarteten Pu-238-Gehalt mit Ausnahme der Kapseln Nr. 67 und 68 sehr gut. Größere Schwankungen treten bei der Auswertung über die 1001 KeV-Linie auf, die sich durch die schlechtere Impulsstatistik erklären lassen; jedoch weisen auch hier die Kapseln 67 und 68 die größten Abweichungen auf. Die relativ große Diskrepanz bei diesen beiden Kapseln konnte anhand der vorliegenden Meßdaten nicht erklärt werden. Eine Nachmessung war aus Zeitgründen nicht möglich.

1.2.2 Abschätzung des O-18-Gehalts

Für die O-18-Bestimmung eignet sich die durch Dopplereffekt stark verbreitete 1398 KeV-Linie noch am ehesten, da die übrigen Linien geringere Nachweisempfindlichkeit aufweisen (z.B. auch die stärker intensive Linie bei 351 KeV) bzw. wegen ihrer zu geringen Intensität nicht geeignet sind (98). Die auf α -induzierte Kernreaktionen an O-18 zurückzuführenden γ -Linien lassen sich nur in der Vergleichsprobe mit natürlichem Sauerstoff deutlich erkennen (Abb. 2). Nach den in Tabelle 2 wiedergegebenen Ergebnissen kann nur in den Kapseln Nr. 74, 75 und 76 ein meßbarer O-18-Gehalt festgestellt werden, während er in den übrigen Kapseln unterhalb der Nachweisgrenze liegt. Diese hat jedoch mit ca. 5 ng O-18, entsprechend einem O-18-Gehalt in den Kapseln von im Mittel etwa 0,02% (Anreicherung um den Faktor 10) einen recht hohen Wert. Demnach eignet sich die γ -Spektrometrie - jedenfalls unter den vorliegenden Meßbedingungen - nicht zur Überprüfung des O-18-Gehalts in dem angestrebten Konzentrationsbereich von $10^{-3}\%$.

Abb. 2: γ -Spektrum von Pu-238-Oxid mit natürlichem Stickstoff

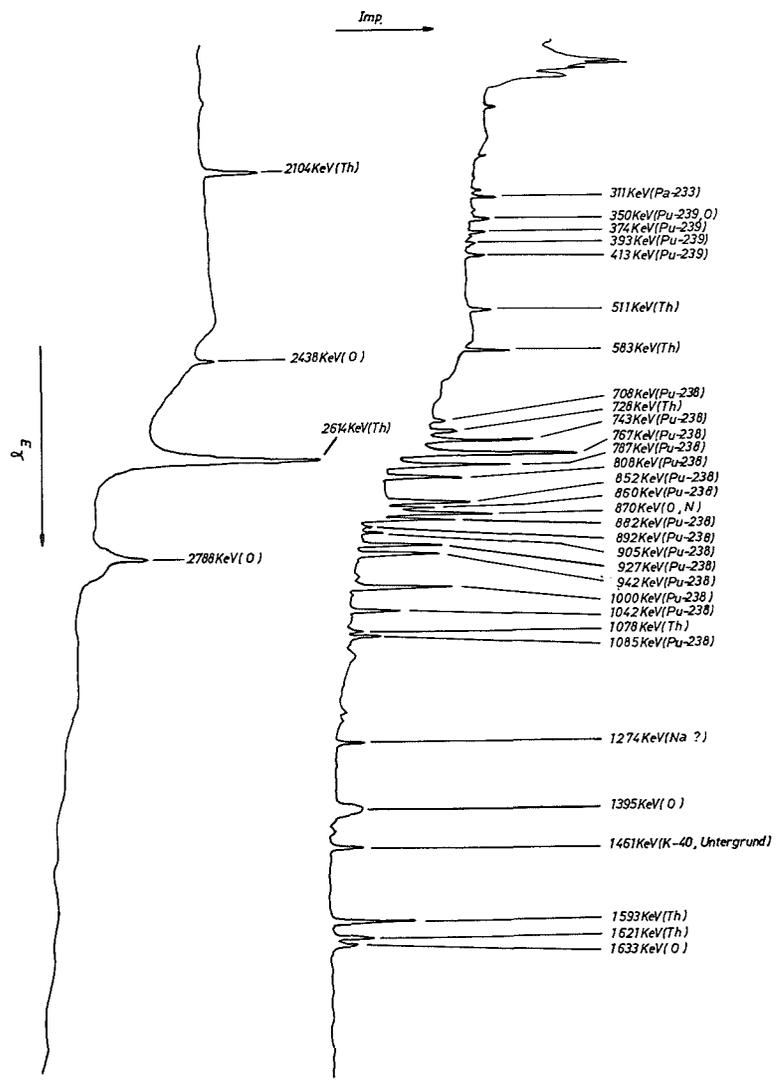
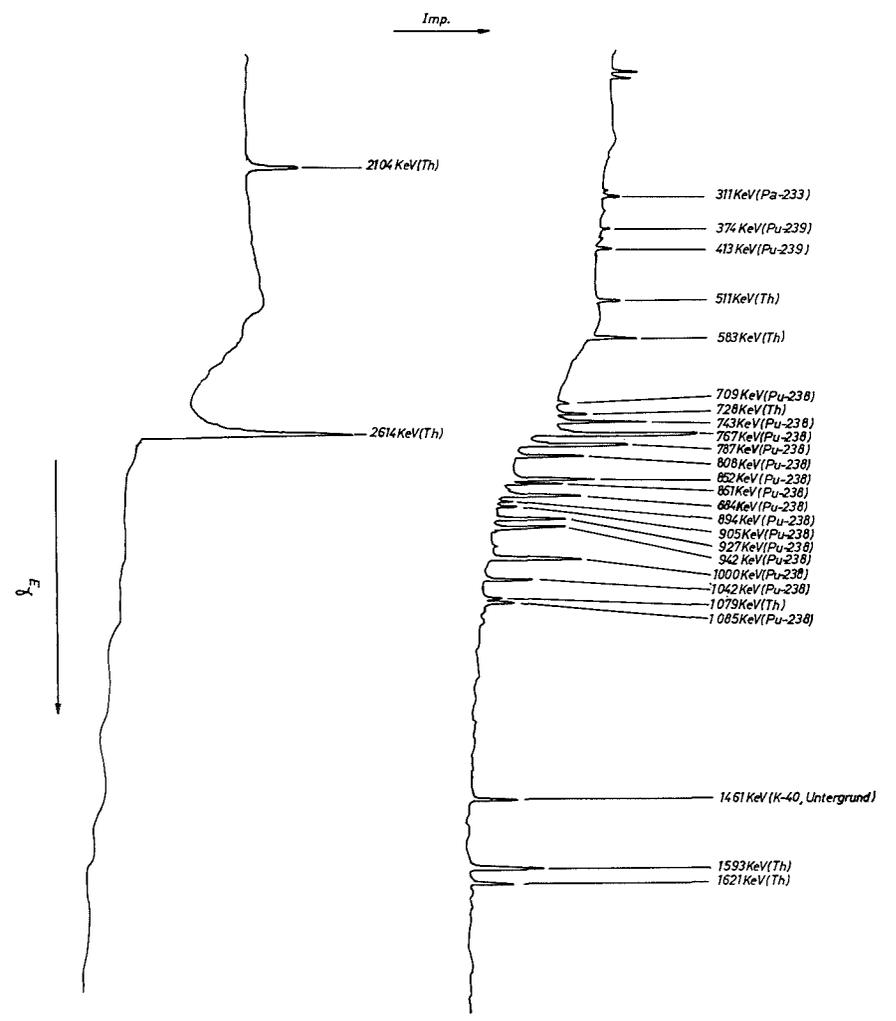


Abb. 1: γ -Spektrum von Pu-238-Oxid (Kapsel Nr. 69); 0-18-abgereicherter Sauerstoff



Kapsel Nr.	PuO ₂ (mg)	O (mg)	O-18 (ng) gefunden	O-18-Isotopengehalt (%)	Abreicherungs-faktor
65	221,9	26,3	≤ 5,2	≤ 0,02	≥ 10
67	227,8	27,0	≤ 5,2	≤ 0,02	≥ 10
68	223,7	26,5	≤ 5,2	≤ 0,02	≥ 10
69	226,2	26,8	≤ 5,2	≤ 0,02	≥ 10
70	229,1	27,2	≤ 5,2	≤ 0,02	≥ 10
72	221,9	26,3	≤ 5,2	≤ 0,02	≥ 10
73	223,4	26,5	≤ 5,2	≤ 0,02	≥ 10
74	219,9	26,1	10,0	0,04	~ 5
75	240,5	28,5	15,4	0,05	~ 4
76	222,5	26,4	10,9	0,04	~ 5
22	225,5	26,7	14,7	0,055	~ 4
Bezugsprobe	394,0	46,7		0,204	

Tabelle 2: Ergebnisse der γ -spektrometrischen O-18-Bestimmung in Herzschrittmacherkapseln

Teilprobe	PuO ₂ (mg)	O (mg)	O-18 (ng) (gefunden)	O-18-Isotopen- gehalt (%)	Abreicherungs- faktor
B 1	1726	204,6	224	0,11	1,9
B 2	1084	128,4	111	0,09	2,3
B 3	1566	185,6	167	0,09	2,3
B 4	798	94,5	121	0,13	1,6

Tabelle 3: O-18-Isotopengehalt von PuO₂-Proben (3. USAEC-Lieferung) nach Sauerstoffaustausch.

1.3 Bestimmung der O-18-Abreicherung in PuO_2 nach Sauerstoffaustausch

Hierbei handelte es sich um Pu-238-Oxid aus der 3. USAEC-Lieferung, das von der Fa. Alkem der Sauerstoffaustauschreaktion unterzogen wurde. Gemessen wurden 4 Teilproben dieses Materials; als Vergleichsprobe wurde wieder Pu-238-Oxid mit natürlichem Sauerstoff verwendet. Die Auswertung erfolgte, wie unter 2.2 beschrieben, über die 1398 KeV-Linie. Wie die Ergebnisse (Tabelle 3) zeigen, liegen die gefundenen O-18-Werte mit im Mittel etwa 0,1 % (Abreicherungsfaktor 2) in diesem Falle ohne weiteres in dem γ -spektrometrisch erfaßbaren Bereich.

1.4 Untersuchungen zur Verbesserung der Meßmethode

Verunreinigungen an leichten Elementen, deren Bestimmung wegen ihres Beitrags zur Neutronenemission von großem Interesse ist, lassen sich γ -spektrometrisch auf Grund der unzureichenden Nachweisempfindlichkeit der bisher verwendeten Meßanordnung nicht bzw. nur bei höheren Konzentrationen (O-18) nachweisen. Durch Verwendung einer Koinzidenzmeßanordnung, mit der das γ -Spektrum in Koinzidenz zu den von der Probe emittierten Neutronen gemessen wird, sollte jedoch die Nachweisempfindlichkeit für prompte γ -Strahlung aus α , n-Reaktionen erheblich gesteigert werden (99). Vorbereitende Untersuchungen, die die Erstellung einer geeigneten Meßapparatur zum Ziel haben, sind inzwischen im INR aufgenommen worden.

2. Neutronenaktivierungsanalytische Untersuchungen geologischer Proben H. Ruf

Im Rahmen der analytischen Arbeiten sind 1973 für PACT eine Reihe geologischer Proben neutronenaktivierungsanalytisch untersucht worden. In den meisten Fällen ließen sich die Bestimmungen ohne chemische Trennungen, also nur gammaspektroskopisch mit dem Ge(Li)-Detektor durchführen.

Je nach den stark unterschiedlich gearteten Probenzusammensetzungen genügten z.T. sehr kurze Bestrahlungs- und Abkühlzeiten, um die Elemente Mangan, Kupfer, Chlor, Natrium, Kalium bzw. Wolfram, soweit diese in genügend hohen Konzentrationen vorlagen (Prozent- und Subprozentbereich), in Anwesenheit vieler anderer Elemente zu bestimmen. Auch das zu den Hauptbestandteilen einiger Proben zählende Aluminium, dessen naßchemische Bestimmung aufwendig ist, ließ sich bei der verhältnismäßig kurzen Halbwertszeit des Al-28 (2,3 Minuten) unter Benutzung der zum FR2 führenden Rohrpostanlage nach Bestrahlungszeiten von nur wenigen Sekunden quantitativ erfassen. In Proben, in denen möglichst viele Elemente bestimmt werden sollten, diente zur Vereinfachung der Prozedur ein einziges mitbestrahltes Standard-Element mit genau bekannten Kerndaten, wie Kobalt oder Gold als nichtisotoper Monitor für die halbquantitative Bestimmung aller in den Gammapektren erkennbaren Elemente. Nach längeren Bestrahlungszeiten (Stunden bis Tage) sind auf diese Weise Chrom, Eisen, Kobalt, Scandium, Cäsium, Arsen, Antimon, Lanthan, Hafnium, Gold, Platin und Iridium bestimmt worden.

Uran wurde durch Bestrahlen mit Resonanzneutronen (Bestrahlung in Kadmiumumhüllung) und Messen der Tochteraktivität Np-239 ebenfalls zerstörungsfrei bestimmt.

Die geforderte Bestimmung von Titan, Magnesium, Nickel, Kadmium, Gadolinium, Samarium und Europium in einem Gabbro ließ sich allerdings wegen aufgetretener Störaktivitäten nicht ohne chemische Aufarbeitung des Probenmaterials durchführen. Zur Bestimmung von Magnesium und Titan wurden deshalb die in einem vorangegangenen Trennungsgang angefallenen chloridfreien Mg- und Ti-Fractionen bestrahlt und anschließend die kurzlebigen Gamma-Aktivitäten (Mg-27 bzw. Ti-51) gemessen. Durch Reagenzien unbeabsichtigt eingeschleppte Mg- und Ti-Spuren waren vernachlässigbar. Bei der Bestimmung von Nickel, Kadmium, Gadolinium, Samarium und Europium bewährte sich die Durchführung der zeitraubenden Kieselsäuretrennung vor der Bestrahlung. Die dadurch erzielte wesentliche Verkürzung der nach der Bestrahlung erforderlichen Trennzeit kam wegen der kürzeren Halbwertszeit von Ni-65 besonders der Nickel-Bestimmung zustatten.

Der Letzteren diente die Fällung mit Dimethylglyoxim nach Zugabe von Ni-Träger mit anschließender gamma-spektroskopischer Messung der im Niederschlag enthaltenen Aktivität. Gadolinium, Samarium und Europium fielen bei einer Gruppentrennung zusammen mit dem nach der Bestrahlung als Träger zugesetzten und dann mit Ammoniak als Hydroxid gefällten Lanthan an. Eine Auftrennung der Seltenen Erden erübrigte sich aufgrund der am hochauflösenden Ge(Li)-Kristall vorgenommenen Gamma-Messung. Die Kadmium-Aktivität schließlich sammelte sich im Niederschlag von Kadmiumsulfid, nachdem Cd-Träger zugegeben und dieser mit Schwefelwasserstoff im schwach sauren Milieu gefällt worden war.

Als Umhüllungsmaterial für die zu bestrahlenden Proben dienten Kapseln aus hochreinem Polyäthylen (bei Bestrahlungszeiten bis zu 1 h) und solche aus genügend reinem Aluminium (Bestrahlungszeiten länger als 1 h). Bei allen bis zu einer Stunde Expositionszeit ausgeführten Bestrahlungen diente die fest installierte Rohrpostanlage zum Proben-transport in den Reaktor und zurück.

Literaturverzeichnis

- (1) M. Wilhelmi, KFK 1974, in Vorbereitung
- (2) J.E. Ballou et al., Health Physics 13 (1967) S. 1087-92
- (3) J.C. Nenot et al., Health Physics 22 (1972) S. 657-65
- (4) J.P. Vaane, Actinides Review 1 (1969) S. 337-70
- (5) D.E. Patterson, Proc. 18. Conf. on Remote Systems Technology, Washington, D.C., 16.-18.11.1970
- (6) R.L. Shearin and Phillips C.R., IAEA-Symp., Rapid Methods for Measuring Radioactivity in the Environment 5.-9.7.1971, München, Germany
- (7) G.P. Dix, 2. Intern. Symp. on Power from Radioisotopes, Madrid 29.5.-1.6.1972 OECD Nuclear Energy Agency 1972, S. 779-97
- (8) S.E. Bronisz, LA-4914-MS (1972) IV
Strahlenschutzprobleme beim Umgang mit Plutonium
- (9) W.H. Langham, LA-4756, Proc. of Environmental Plutonium Symp. LASL 4.-5.8.1971
- (10) D.W. Rhodes, Soil Science 84 (1957) S. 465-70
- (11) E.P. Hardy and Krey, P.W., LA-4756: Proc. of Environmental Plutonium Symposium, LASL 4.-5.8.1971 S. 37-42
- (12) B.F. Hajek, BNWL-CC-925 (1966)
- (13) C.W. Christenson and Thomas, R.G., TID 7628 (1961) S. 248-81

- (14) W.L. Polzer, Proc. of the Rocky Flats Symp. on Safety in Plutonium Handling Facilities, 13.-16.4.1971 S. 411-29
- (15) K.H. Larson et al., UCLA-140 (1951)
- (16) J.H. Olafson, H. Nishita and Larson, K.H., UCLA 406 (1957)
- (17) M.Sakanoue and Tsuji, T., Nature, 234 (1971) S. 92-3
- (18) M. Sakanoue, Nakaura, M. and Imai, T., IAEA-Symp. Rapid Methods for Measuring Radioactivity in the Environment, München 5.-9.7.1971 Germany
- (19) E.M. Romney and Davis, J.J., UCLA-12-848 (1971)
- (20) E.M. Romney Mork, H.M. and Larson, K.H., UCLA-12-815 Annual Progress Report for the Period Ending June 30, 1971 S. 92
- (21) H. Nishita, Romney, E.M. and Larson, K.G., in E.P. Fowler: Radioactive Fallout, Soils, Plants, Foods, Man; Elsevier Publ. Co (1965) S. 55-81
- (22) H.S. Jordan, LA 4756: Proc. of Environmental Plutonium Symp. Held at LASL 4.-5. Aug. (1971) S. 21-24
- (23) L.T. Odland, Thomas, R.G., Taschner, J.C., Kaufman, H.R. and Benson, R.E., Proc. of a Symp. Richland, Wash., USA 15.-7.5.1967 S. 256-65
- (24) A. Aarkrog, Health Physics, 20 (1971) 1, S. 31-47
- (25) A. Aarkrog, EUR 4800, Int. Symp. "Die Radioökologie, angewendet auf den Schutz des Menschen ..." Rom 7.-10.9.1971 S. 1213-18
- (26) Serious Accidents 306 (1969)
- (27) D.C. Hunt, Nuclear Safety, 12, (1971) 2, S. 85-9
L.J., Seminar on Radiation Protection Problems Relating to Transuranium Elements, Karlsruhe 21.-25. Sept. 1970, Germany
Experience with Handling Transuranium Elements at Los Alamos

- (28) Nucleonics Week, 11 (1970) 7, S. 1-2
- (29) H.L. Volchok, Knuth, R.H. and Kleinman M.T., Health Physics 23 (1972) 3, S. 395-6
- (30) Anonym, WASH-1507 (1972) II
- (31) H. Nishita, Romney, E.M. and Larson, K.H., Agricultural and Food Chemistry 9 (1961) S. 101-06
- (32) W.A. Thomas, ORNL-4316 (1968) S. 104-05
- (33) W.A. Thomas and Jacobs, D.G., Soil Science 108 (1968) S. 305-07
- (34) S.L. Cummings and Bankert, L., Radiological Health and Data Reports, 12 (1971) 2, S. 83-5
- (35) W. Bliss and Dunn L., LA 4756, Proc. of Environmental Plutonium Symp., LASL 4.-5.8.1971 S. 89-92
- (36) J.H. Rediske, J.F. Cline and A.A. Seiders, HW-36734 (1955)
- (37) A. Wallace, 11, Hanford Biology Symp.: The Biological Implications of the Transuranium Elements, 26.-29.9.1971 Richland, Wash.
- (38) E.M. Romney, Mork, H.M. and Larson, K.H., UCLA-12-754 (1969) and Health Physics 19 (1970), S. 487-91
- (39) J.V. Panesko, ARH-2401 (1972) III Nature 203 (1964) S. 568-71
Plutonium in the Marine Environment
- (40) V.E. Noshkin, NYO-2174-132 (1971) 11, Hanford Biology Symp.: The Biological Implications of the Transuranium Elements, 26.-29.9.1971 Richland, Wash.
Health Physics 22 (1972) S. 537-49
- (41) K.M. Wong, Noshkin, V.E., Surprenant, L. and Bowen, V.T., HASL-227 (1970) S. I/25-I/33
- (42) S.Z. Mikhail and Kubose, D.A., 14. Symp. on Materials for Radio-Isotope Heat Sources, Proc. of the 1968 Nuclear Metallurgy Symp. 2.-4.10.1968 Gatlinburg, Tenn. S. 323-54

- (43) D.A. Kubose et al. USNRDL-TR-68-74 (1968)
- (44) G.P. Dix and Dobry, T.J., Health Physics 22, (1972)
S. 569-74
- (45) J.B. Andelman and Rozzell, T.C., Radionuclides in the
Environment, Advances in Chemistry Series 93, Symp. 155. Meet
of Am.Chem. Soc. 1.-3.4.1968 San Francisco
- (46) V.E. Noshkin et al., NYO-2174-130 (1971)
3rd National Symp. on Radiology, Oak Ridge, Tenn. 10.-12.5.1971
- (47) E.E. Ward, Nature 209 (1966) 5023, S. 625-26
- (48) J.Mishima and Schwendiman, L.C., BNWL-SA-3379 (1970)
- (49) J.Mishima and Schwendiman, L.C., American Nucl. Soc.
1969 Winter Meeting, San Francisco, Calif., 1.-4.12.1969
Hinsdale, III., Transactions of the Amer.Nucl.Soc., 12
(1969) No. 2
- (50) P.W. Krey, Science 158 (1967) S. 769-71
- (51) W. Weinländer, W. Bumiller, A. Knobloch, K.H. Grötzinger
KFK 1656 (1972), S. 77
- (52) G. Höhleln, W. Weinländer, KFK 1456 (1971) S. 94
- (53) W. Weinländer, W. Bumiller, Aufarbeitung von bestrahltem
²⁴¹Am, KFK 1962
- (54) R. Gasteiger, E. Bojarsky, L. Schmidt, S. Nazaré, KFK 1544
(1971), S. 37
- (55) R. Gasteiger, KFK 1788 (1973) S. 14
- (56) Samek A.Ali, Gesellschaft f. Kernforschung Karlsruhe,
75 Karlsruhe, Postfach 3640; priv. Mitteilung
- (57) C.H. Leichsenring, M.A. Mellin, KFK 1544 (1972) S. 129

- (58) C.H. Leichsenring, G. Gumb, KFK 1656 (1972) S. 95
- (59) C.H. Leichsenring, H. Antoni, KFK 1656 (1972) S. 98
- (60) C.H. Leichsenring, G. Kunz, K. Klotz, KFK 1544 (1972) S. 125
- (61) W. Hempelmann, M. Kienhöfer, G. Waldenmayer, Patentanmeldung Nr. 2050598 o (1970)
- (62) C.H. Leichsenring, G. Gumb, K. Klotz, W. Weinländer KFK 1544 (1972) S. 119
- (63) W. Robel, IRCh der Gesellschaft für Kernforschung, priv. Mitteilung
- (64) H. Werle, Nucl. Instr. Meth. 99 (1972) 295
- (65) M.E. Anderson, Trans. ANS 9 (1966) 600
- (66) K. Böhnel, Trans. ANS 15 (1972) 671
- (67) F. Manero, Konshin, V.A., INDC(NDS)-34/G (1972)
- (68) Keepin, C.R., "Physics of Nuclear Kinetics", Addison-Wesley, Reading, 1965, S. 101
- (69) B.C. Diven, et al., Phys. Rev. 101 (1956) 1012
- (70) Y.A. Ellis, Nuclear Data B4 (1970) 661
- (71) G. Seiler, In-vivo-Aktivierungen in der Medizin, KFK 1788 (1973) S. 93
- (72) D.H. Stoddard, W.E. Hootmann, ²⁵²Cf Shielding Guide, Savannah River Laboratory 1971, DP-1246
- (73) U. Fanger, R. Pepelnik, KFK 1788 (1973), S 53

- (74) S.J. Friesenhahn et al.
Nucl. Science and Engineering, Vol. 26, p.487-99 (1966)
- (75) P.H. Kier, A. Robba, ANL 7326 (1967)
- (76) L.P. Abagjan et al., KFK tr 144
- (77) H. Würz, L. Buth, KFK 1771 (1973)
- (78) F.E. Senftle et al., Nucl. Instr. and Methods 104, 485 (1972)
- (79) R. Wolf, L. Bösch, KFK 1788 (1973) S. 91
- (80) A. Suppan, KFK 1788 (1973) S. 90
- (81) A. Suppan, KFK 1788 (1973) S. 83
- (82) A. Suppan, KFK 1949 (1974) in Vorbereitung
- (83) A. Lubecki, H. Vogg, KFK 1544 (1972) S. 169
- (84) A. Lubecki, KFK 1656 (1972) S. 157
- (85) A. Lubecki, KFK 1788 (1973) S. 71
- (86) A. Lubecki, H. Vogg, KFK 1728 (1973)
- (87) W. Squire: Integration for Engineers and Scientists,
American Elsevier Publishing Company, Inc. New York, 1970,
S. 184
- (88) I.S. Berezin, N.P. Zhidkov: Computing Methods, Vol I.,
Pergamon Press, 1965, S. 301
- (89) I.M. Sobol: Metod Monte-Karlo, Isdateel'stvo Nauka, Moskva 1968
(in Russisch)
- (90) A. Lubecki, J. Schmitz, R. Wolf
Patentanmeldung: Meßsystem einer Bohrlochsonde

- (91) J. Schmitz, R. Wolf
Patentanmeldung: Gekühltes Detektorsystem mit einem Halbleiterdetektor

- (92) H. Würz, L. Buth, KFK 1788 (März 1973), S. 60

- (93) G. Prech, G. Böhme, Workshop-Beitrag auf der "interocean '73" in Düsseldorf, 16. November 1973

- (94) J.L. Mero, The Mineral Resources of the Sea, Elsevier Publ. Comp. (1965)

- (95) J. Lange, Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe, pers. Mitteilung

- (96) M. Martini, T.A. McMath, I.L. Fowler, IEE Trans. NS-17,3 (1970) 139

- (97) VDI-Wärmeatlas 1963, VDI-Verlag Düsseldorf.

- (98) A.v.Baeckmann, E. Gantner, KFK 1656 (1972) S. 124

- (99) W. Weinländer, Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe, pers. Mitteilung