KFK-159

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

Mai 1963

KFK 159

Strahlenmeßabteilung

Zur Dosimetrie schneller Neutronen mit Kernspurfilmen

E. Piesch



SONDERDRUCK AUS HEFT.5 9. JAHR. MAI 1963

ATOMPRAXIS

Internationale Monatsschrift für angewandte Atomenergie in Industrie, Landwirtschaft, Naturwissenschaften und Medizin unter besonderer Berücksichtigung der Medizinischen Strahlenbiologie sowie des Strahlenschutzes

Hauptschriftleiter: Prof. Dr. rer. nat. Dr. med. E. H. Graul, Marburg/L., Robert-Koch-Str. 8a · Verlag G. Braun, Karlsruhe, Karl-Friedrich-Str. 14—18

Zur Dosimetrie schneller Neutronen mit Kernspurfilmen

Von E. Piesch

Einleitung

Für die Dosimetrie schneller Neutronen im Energiebereich von 0,5 bis 20 MeV werden bevorzugt Kernspuremulsionen verwendet, da sie relativ empfindlich sind und eine einfache Bestimmung der Dosis ermöglichen. Außerdem kann — im Gegensatz zu anderen Meßmethoden — der Meßwert zu jedem späteren Zeitpunkt nachgeprüft werden, was für die Überwachung beruflich strahlenexponierter Personen wünschenswert ist. Deshalb wird diese Meßmethode hauptsächlich zur Personendosisbestimmung in der Umgebung von Reaktoren, Beschleunigern und Neutronenquellen angewandt. Dazu kommt die Eignung für Ortsdosisbestimmungen speziell an unzugänglichen Stellen oder in solchen Fällen, wo kleine Dosisleistungen vorliegen und daher längere Expositionszeiten notwendig sind.

Schnelle Neutronen lassen sich in der photographischen Emulsion über die elastische Streuung an Wasserstoffkernen nachweisen. Die hierbei entstehenden Rückstoßprotonen ionisieren entlang ihres Weges und erzeugen innerhalb der Emulsion ein latentes Bild, welches nach dem Entwickeln als Kernspur sichtbar wird.

Als kleinste, gerade noch feststellbare Spur wird oft eine solche betrachtet, die aus drei hintereinander liegenden Silberkörnern besteht [1]. In der Praxis findet man aber immer als sogenannten Untergrund bzw. Schleier vereinzelte Silberkörner vor, die aus statistischen Gründen eine zufällige "Dreikornspur" vortäuschen. Bei normalem Untergrund werden daher zweckmäßig nur vier oder mehr aufeinander folgende Silberkörner als Spur gekennzeichnet. Berücksichtigt man die Winkelabhängigkeit der elastischen Streuung, wonach im Mittel nur der halbe Energiebetrag an das Rückstoßproton übertragen wird, dann erhält man annähernd die kleinste nachweisbare Neutronenenergie. Einer Dreikornspur entspricht etwa eine Protonenenergie von 0,25 MeV, einer Vierkornspur eine Protonenenergie von 0,425 MeV. Unter diesen Voraussetzungen ist der Kernspurfilm für Neutronenenergien unter 0,5 MeV unempfindlich, eine wesentliche Nachweisempfindlichkeit ist erst oberhalb 0,8 MeV zu erwarten.

Die Anzahl der in der Emulsion erzeugten Rückstoßprotonen ist bei gleicher Energieverteilung proportional zum eingestrahlten Neutronenfluß. Werden die Kernspuren innerhalb einer definierten Fläche mikroskopisch ausgezählt (bei einer ca. 600- bis 900 fachen Vergrößerung), dann laßt die Spurendichte (Anzahl der Kernspuren/cm²) eine quantitative Aussage über die Neutronendichte (Anzahl der Neutronen/cm²) zu. Über eine experimentelle Eichung, z. B. mit Po-Be-Neutronen, kann einem Neutronenfluß bei bekannter Bestrahlungsdauer eine bestimmte Kernspurdichte zugeordnet werden. Diese Zuordnung ist jedoch nur für die jeweilige Energieverteilung gultig, weil die Ansprechwahrscheinlichkeit der Emulsion von der Energie der einfallenden Neutronen abhängig ist.

Aus der Spurenlänge der erzeugten Rückstoßprotonen wäre es zwar grundsätzlich möglich, eine zusätzliche Aussage über die ursprüngliche Neutronenenergie zu treffen. In der Praxis verlassen jedoch mit zunehmender Neutronenenergie und größer werdender Reichweite der Rückstoßprotonen immer mehr Rückstoßprotonen die Emulsion. Die beobachteten Kernspuren sind daher wesentlich kürzer, als es der Gesamtreichweite des Rückstoßprotons entsprechen würde. Es ist ein recht seltenes Ereignis, daß unter den längsten Kernspuren eine beobachtet wird, deren Ursprung und Ende innerhalb der Emulsion liegt. Es ist daher im allgemeinen nicht möglich, aus der längsten, festgestellten Spur auf eine ursprüngliche Neutronenenergie zu schließen. Die Bestimmung einer Energieverteilung beschränkt sich nur auf den Fall einer definierten Bestrahlungsrichtung sowie auf eine statistische Auswertung der gemessenen "Winkel-Reichweite-Beziehung" einer Vielzahl von Spuren. Bei einer routinemäßigen Auswertung kann daher die Spurenlänge unberücksichtigt bleiben.

Eine exakte Neutronendosisbestimmung ist nur möglich bei gleichzeitiger Kenntnis der Energieabhängigkeit der Aus der Strahlenmeßabteilung des Kernforschungszentrums Karlsruhe

Ansprechwahrscheinlichkeit der Emulsion, der Energieabhängigkeit der Neutronenfluß-Dosis-Zuordnung und der Energieverteilung des jeweiligen Neutronenflusses selbst.

Für die praktische Neutronendosimetrie stellt sich nun die Frage, wie eine Dosiszuordnung erfolgen soll und ob und in welchem Energiebereich die Nachweiswahrscheinlichkeit dosisproportional ist.

Im folgenden soll gezeigt werden, mit welcher Genauigkeit man bei einer beliebig vorgegebenen Neutronenenergieverteilung die Dosisbestimmung durchführen kann. Weiter wird die für die Bestimmung der Personendosis wichtige Frage erörtert, welchen Einfluß auf das Meßergebnis Absorption, Rückstreuung und "build-up" der Primärneutronen durch den Körper ausüben. Weiter ergeben sich Auswertefehler durch einen möglichen Latenzbildschwund, durch die mikroskopische Auswertung sowie durch einen höheren γ -Untergrund, der eine Spurenauszählung behindern oder vollkommen unmöglich machen kann, auf die in diesem Zusammenhang nicht eingegangen wird [11].

Probleme der experimentellen Ermittlung der Nachweiswahrscheinlichkeit von Kernspurfilmen

Der einfachste Weg, eine Aussage über die Energieabhängigkeit des Kernspurfilms zu erhalten, besteht darin, Filme mit definierten Neutronenenergien zu bestrahlen. Nun liegen zahlreiche Eichungen mit Po-Be-Neutronen vor, bei denen sich die Angaben über die Spurenzahl/Neutron bis zum Faktor 2 unterscheiden [2 bis 9] (Meßwerte zwischen 5 und $10 \cdot 10^{-4}$ Spuren/Neutron). Allerdings darf die Genauigkeit einer Neutroneneichung nicht überschätzt werden. Als mögliche Meßunsicherheiten müssen angesetzt werden:

Eichung der Quelle: 5 bis 15% Rückstreuung der Neutronen an Wänden und Luft: 5 bis 30%

Statistische Fehler der mikroskopischen Auswertung: ca.5 bis 10%. Ein wesentlicher Nachteil der Po-Be-Eichung ist das breite Energiespektrum von 1 bis 10 MeV (Maximum 3 bis 5 MeV) (s. Abbildung 1). Solche Eichungen sind daher unbefriedigend.

Es sind deshalb Eichungen mit monoenergetischen Neutronen durchgeführt worden, und zwar mit 14 MeV-Neutronen [8, 9, 10], die man mit einem Neutronengenerator über die Deuterium-Tritium-Reaktion ³H (d, n) ⁴He erzeugen kann [12]. Eine Eichung mit 14 MeV-Neutronen hat unverkennbare Vorteile gegenüber einer Eichung mit (α , n)-Neutronenquellen:

- 1. Die Neutronen sind monoenergetisch gegenüber einem Energiebereich von 1 bis 10 MeV bei Po-Be-Neutronen.
- 2. Quellstärken von 10¹⁰ n/sec gegenüber etwa 10⁶ n/sec.
- 3. Kein störender y-Untergrund.
- 4. Genauere mikroskopische Auswertung, weil die überwiegend energiereichen Rückstoßprotonen längere Spuren erzeugen. Damit sind relativ weniger Spuren an der unteren Nachweisgrenze zu finden.
- 5. Eine genaue Bestimmung des Neutronenquellflusses ist hier über das assoziierte α -Teilchen möglich [13].

KERNREAKTOR 18. Sep. 1963 Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H. Verwaltung der Zentralbücherei



Abbildung 1. Die relative Energieverteilung von Po-Be-Neutronen und von prompten Spaltneutronen. Kurve 1: Prompte Spaltneutronen von ^{***}U [22]; Kurve 2: Po-Be-Spektrum [19]

Eine genaue Flußbestimmung nach obiger Methode (Punkt 5) steht jedoch noch aus, so daß auch hier die gleiche Meßunsicherheit vorliegen kann wie bei der Po-Be-Eichung¹.

Eine Eichung mit Po-Be- bzw. 14 MeV-Neutronen läßt nun keine Aussage zu, wie empfindlich der Film bei anderen Energieverteilungen ist. Tatsächlich sind in den meisten Fällen ganz andere Energieverteilungen vorherrschend. In der Umgebung eines Reaktors müßte man das Spektrum der prompten Spaltneutronen zugrunde legen (s. Abbildung 1); hier ist das Maximum der Energieverteilung bei wesentlich kleineren Energien als bei Po-Be-Neutronen zu finden.

Durch eine Abschirmung der Neutronenquelle sowie durch Rückstreuung der Neutronen an den Wänden und der Luft wird außerdem der Energiebereich des ursprünglichen Spektrums derart verändert, daß man Eichungen mit "definierter" Energieverteilung keine allzu große Bedeutung zuschreiben kann.

Da sich alle Eichungen auf Angaben des Neutronenflusses beziehen, ist eine eindeutige Fluß-Dosis-Zuordnung notwendig. Es soll ja eine Aussage über eine Spurenzahl/cm² · rem getroffen werden. Aber auch diese RBW-Dosis ist von der Neutronenenergie abhängig. Eine allgemeine Zuordnung der Spurenzahl zur Dosis ist daher durch experimentelle Eichungen nicht zu erreichen.

Aus diesen Gründen erscheint es zweckmäßig, die theoretische Dosisnachweisempfindlichkeit des Kernspurfilms in Abhängigkeit von der Neutronenenergie zu berechnen. Damit könnte man für jede beliebige Energieverteilung innerhalb des in Frage kommenden Energiebereichs eine *mittlere* Ansprechwahrscheinlichkeit bestimmen.

Da die Dosisbestimmung an verschiedenen Stellen durchgeführt wird (Reaktor, Neutronenquellen, Beschleuniger), ist es zweckmäßig, zwischen verschiedenen Überwachungsfällen zu unterscheiden. Es ist naheliegend, die ursprüngliche Energieverteilung der Neutronenquelle auch für den jeweiligen Überwachungsfall als repräsentativ anzusehen. Man würde damit z. B. folgende Fälle erhalten: Unterer Energiebereich: Energieverteilung der. (Reaktorüberwachung) prompten Spaltneutronen; mittlerer Energiebereich 3 bis 10 MeV: Po-Be-Neutronen; (Neutronenguellen:

Pu-Be, Po-Be, Ra-Be)

oberer Energiebereich: 14 MeV-Neutronen. (>10 MeV: Beschleuniger)

Diese willkürliche Einteilung ist für eine Dosiszuordnung sowie für den Vergleich einer berechneten und experimentellen Nachweiswahrscheinlichkeit notwendig und, wie im folgenden noch gezeigt wird, auch ausreichend.

Berechnung der Ansprechwahrscheinlichkeit des Kernspurfilms

Bei der Berechnung der Ansprechwahrscheinlichkeit muß der Anteil an Rückstoßprotonen bestimmt werden, der in der Emulsion selbst ausgelöst wird sowie der Anteil, der aus dem Schichtträger bzw. der Filmverpackung in die Emulsion eintritt und dort nachgewiesen wird. Die Zahl der entstehenden Rückstoßprotonen ist in erster Linie von dem Wasserstoffgehalt der Emulsion, des Schichtträgers und der Verpackung abhängig, ferner vom Wirkungsquerschnitt der (n, p)-Streuung.

Im wesentlichen wird eine ähnliche Energieabhängigkeit erhalten, wie dies bei einem Rückstoßproportionalzähler der Fall ist, falls man einen dünnen Radiator und ein beschränktes Nachweisvolumen zugrunde legt. Derartige Berechnungen sind des öfteren sowohl für Rückstoßproportionalzähler [14, 15] als auch für spezielle Filmkombinationen [1, 3, 8] durchgeführt worden.

Für die Berechnung der Rückstoßprotonenausbeute eines Radiators wurden die Ableitungen von Cook [1] benutzt. Die verschiedenen Rückstoßprotonenanteile ergeben sich hierbei zu:

1. Rückstoßprotonen aus der Emulsion für $E > E_{min}$:

$$F_1(E) = N_{\rm e} \cdot \sigma(E) \cdot d \cdot \left(1 - \frac{E_{\rm min}}{E_0}\right);$$

 $\sigma(E) =$ Wirkungsquerschnitt für elastische (n, p)-Streuung an Wasserstoff,

- E_0 = größte Protonenenergie,
- E_{\min} = kleinste nachweisbare Protonenenergie,
- d = Emulsionsdicke [cm],
- $N_{\rm e}$ = Wasserstoffatome/cm³ der Emulsion.
- 2. Rückstoßprotonen aus einem wasserstoffhaltigen Radiator:
- a) Protonenreichweite R im Radiator kleiner als Schichtdicke d (R < d):

$$F_{2}(E) = \frac{2}{3} \cdot N_{r} \cdot \sigma(E) \cdot \left[\frac{3}{2n+3} \cdot R_{0}(E) - R_{\min}(E) + R_{\min}(E) \cdot \frac{2n}{2n+3} \cdot \left(\frac{E_{\min}}{E_{0}}\right)^{1,5}\right];$$

b) Protonenreichweite im Radiator größer als Schichtdicke (R > d):

$$F_{3}(E) = N_{\mathbf{r}} \cdot \sigma(E) \cdot d_{\mathbf{r}} \cdot \left[1 - \frac{2n+1}{2n+3} \cdot \left(\frac{d_{\mathbf{r}}}{R_{0}(E)}\right)^{\frac{2}{2n+1}}\right];$$

¹ Über experimentelle Eichungen soll an anderer Stelle ausführlich berichtet werden.

Tabelle 1. Das Gewicht und der Wasserstoffgehalt der Bestandteile des Kodak-Kernspurfilms, Typ A

,		Flächengewicht [mg/cm ³]	spez. Gewicht	Wasserstoffgehalt	
			[g/cm*]	[%]	[mg/cm ³]
	1 Papier, weiß 2 Papier, schwarz	16,8 8,0	1,0 1,05	7,36 6,9	73,6 72,4 Mittelwert
2	V ordersette	24,8			<i>13</i> ± 0,0
3) ************************************	3 Emulsion	12,0	3,64*	1,6*	58,3
5	4 Schichtträger 5 Papier.	25,6	1,28	5,8	73,5
<i>s</i>	2mal schwarz 6 Papier, weiß	16,0 12,0	1,05 1,0	6,9 7,4	72,4 74,0
	Rückseite	53,6			$73,15 \pm 0,75$

* Angaben des Herstellers

$$d_{\rm r}$$
 = Radiatorstärke [g/cm²],
 $N_{\rm r}$ = Wasserstoffatome/g des Radiators,
 $R_0, R_{\rm min}$ = Rückstoßprotonenreichweite im Radiator
für Protonen der Energie E_0 bzw. $E_{\rm min}$.

Die Energiereichweitebeziehung der Rückstoßprotonen in Polyäthylen wurde nach den Werten von Rich und Madey [16] mit $R(E) = 1,9 \cdot E^{1,75}$ angenommen (*R* in mg/cm², *E* in MeV).

 Rückstoßprotonen aus einem wasserstoffhaltigen Radiator, der durch eine Metallfolie abgedeckt ist [14]:

$$\begin{split} F_4(E) &= N_{\mathbf{r}} \cdot \sigma(E) \cdot R_0(E) \cdot \left[1 - \frac{2n+1}{2n+3} - \left(\frac{E_{\mathbf{f}}}{E}\right)^n + \frac{2n+1}{2n+3} \cdot \left(\frac{E_{\mathbf{f}}}{E}\right)^{\frac{n(2n+3)}{2n+1}} \right]; \end{split}$$

 $N_{\rm r} = {\rm Wasserstoffatome/cm^3},$

- $R_0 = \max$ imale Reichweite [cm] für Protonen der Energie E,
- $E_{\rm f}$ = Protonenenergie, deren Reichweite der Metallfolienstärke entspricht: $R_{\rm f} = a \cdot E_{\rm f}^n$.

Die vorliegende Rechnung beschränkt sich auf eine Neutroneneinfallsrichtung senkrecht zur Filmebene. Für die praktische Neutronendosimetrie läßt sich mit Vorteil ein von der Firma Eastman Kodak hergestellter NTA-Kernspurfilm verwenden, der in der Verpackung der handelsüblichen Zahnröntgenfilme geliefert wird (Kodak Personal Neutron Monitoring Film, Typ A). Die Filmempfindlichkeit wurde daher speziell für diesen Filmtyp berechnet². Der Wasserstoffgehalt in %, bezogen auf eine relative Luftfeuchtigkeit von 50%, sowie die Schichtstärke in mg/cm² von Emulsion, Schichtträger und Papierverpackung wurden mittels einer chemischen Analyse bzw. über eine Wägung bestimmt und sind in Tabelle 1 wiedergegeben. Der Berechnung wurde eine mittlere Emulsionsdicke von 0,030 mm zugrunde gelegt.

Eine gleichmäßig dicke Papierschicht kann gut hergestellt werden, während das Aufgießen der Emulsion auf den Schichtträger ungleich schwieriger ist. Bei der Papierverpackung konnte dementsprechend keine wesentliche Schwankung der Schichtdicke festgestellt werden, bei verschiedenen Emulsionsserien wurden jedoch Unterschiede von maximal $\pm 15\%$ beobachtet. Der Einfluß einer unterschiedlichen relativen Luftfeuchtigkeit auf den Wasserstoff-

Atompraxis 9 Heft 5 1963



Abbildung 2. Rückstoßprotonenausbeute bei Bestrahlung der Filmvorderseite in Abhängigkeit von der Neutronenenergie. Kurve 1a: Anteil der Rückstoßprotonen, die in der Emulsion erzeugt werden ($E_p \ge 0.25$ MeV; ausgewertet ab Dreikornspur); Kurve 1b: Anteil der Rückstoßprotonen, die in der Emulsion erzeugt werden ($E_p \ge 0.425$ MeV; ausgewertet ab Vierkornspur); Kurve 2: Anteil der Rückstoßprotonen, die aus der Papierverpackung in die Emulsion eintreten ($E \ge 0.425$ MeV)

gehalt der Emulsion kann hier vernachlässigt werden, da bei größerer relativer Luftfeuchtigkeit durch das "fading"³ grundlegend andere Fehler ausschlaggebend sind [1, 11].

Der Rückstoßprotonenanteil aus Emulsion und vorderer Filmverpackung ist in Abbildung 2 in Abhängigkeit von der Neutronenenergie dargestellt. Die charakteristische Energieabhängigkeit beider Anteile zeigt deutlich den Einfluß des Wirkungsquerschnitts, der mit größer werdender Neutronenenergie rasch abfällt (Kurve 1a und 1b), während die Reichweite der entstehenden Rückstoßprotonen zunimmt, so daß zusätzliche Rückstoßprotonen aus entfernt liegenden Schichten der Filmverpackung in die Emulsion eintreten und dort Spuren erzeugen (Kurve 2). Erreichen alle zentral gestoßenen Rückstoßprotonen der Verpackung die Emulsion (Reichweite 25 mg/cm² bei E = 4 MeV), überwiegt wiederum der Einfluß des Wirkungsquerschnitts, so daß die Neutronenausbeute abnimmt. Die aus beiden Anteilen erhaltene Nachweiswahrscheinlichkeit in Protonenspuren/Neutronen zeigt Abbildung 3. Das Maximum der Nachweiswahrscheinlichkeit ist bei Neutronen-

181

² Im folgenden wird dieser Filmtyp kurz als Kernspurfilm bezeichnet.

^{*} Angaben darüber sind fur Ilford-Emulsionen z. B. zu finden bei Shapiro [17].



Abbildung 3. Nachweiswahrscheinlichkeit des Kernspurfilms in Abhängigkeit von der Neutronenenergie für Rückstoßprotonenenergien von $E \ge 0,25$ MeV (Kurve 1a) und $E \ge 0,425$ MeV (Kurve 1b) bei Bestrahlung der Filmvorderseite



Abbildung 4. Das Verhältnis der Nachweiswahrscheinlichkeiten des Kernspurfilms bei Bestrahlung der Rückseite und der Vorderseite des Films in Abhängigkeit von der Neutronenenergie (Meßwerte für Po-Be-Neutronen und 14 MeV-Neutronen)



Abbildung 5. Neutronenfluß-Dosis-Zuordnung in Abhängigkeit von der Neutronenenergie.

- 0-0-0- RBW-Dosis, ethalten aus den maximal zulässigen Neutronenflußwerten, berechnet für ein 30 cm-Phantom (Snyder und Neufeld, siehe z. B. NBS Handbook 75),
- — Erststoßdosis (NBS Handbook 75). Bei der Verwendung der Erst- stoßdosis wurde ein einheitlicher RBW-Faktor von 10 zugrunde gelegt

energien von 5 bis 10 MeV zu finden. Der NTA-Film ist im unteren Energiebereich (E = 1 MeV) relativ unempfindlich. Bei 14 MeV-Neutronen ist der Film etwa genau so empfindlich wie bei 4 MeV (mittlere Energie der Po-Be-Neutronen).

Für die Berechnung wurde als normale Neutroneneinfallsrichtung die Vorderseite des Films gewählt, weil die Rückseite der Filmverpackung aus acht verschiedenen Teilflächen und Schichtdicken zusammengesetzt ist (nur die maximale Schichtdicke von 53,5 mg/cm² kann bei Bestrahlung der Rückseite ausgewertetwerden). Das Verhältnis der Nachweiswahrscheinlichkeit bei Bestrahlung auf die Rückseite und Vorderseite des NTA-Films ist in Abbildung 4 in Abhängigkeit von der Neutronenenergie dargestellt. Unterhalb 5 MeV ist kein wesentlicher Unterschied festzustellen⁴, während bei einer Neutronenenergie von 14 MeV über die Rückseite etwa 40% mehr Spuren nachgewiesen werden. Die Nachweiswahrscheinlichkeit bei Bestrahlung in Filmebene ist wesentlich geringer. Tabelle 2-zeigt solche experimentell gewonnenen Werte.

Tabelle 2. Richtungsabhängigkeit des NTA-Kernspurfilms

Bestrahlung auf:	Vorderseite	Rückseite	Filmebene	
Po-Be-Neutronen:	100% ± 4%	$100\%\pm6\%$	52,7%±5,9%	
14 MeV-Neutronen:	100% ± 4%	$139\%\pm4,6\%$	69%±5,4%	

Für die Dosimetrie ist nun die Frage von Bedeutung, wie weit die Empfindlichkeit des Kernspurfilms dosisproportional ist. Eine RBW-Dosis-Zuordnung kann aus den maximal zulässigen Neutronenflußwerten für eine Jahresdosis von 5 rem unter Zugrundelegung einer 40 Stunden-Woche erhalten werden. Die RBW-Dosis pro Neutroneneinheitsdichte [rem/n/cm²] (s. Abbildung 5) zeigt nun weder einen konstanten Anstieg noch einen stetigen Verlauf. Bei Neutronenenergien von 1 MeV ist die relative biologische Wirksamkeit größer, bei 10 MeV ist eine Unstetigkeit zu finden, da für Energien oberhalb von 10 bis ca. 30 MeV keine berechneten Werte vorliegen. Der Kurvenverlauf entspricht nun keineswegs der Energieabhängigkeit des Filmes. Zum Vergleich ist die Erststoßdosis mit abgebildet5.

Unter Berücksichtigung der RBW-Dosis erhält man eine Nachweiswahrscheinlichkeit in Spuren/cm² rem (s. Abbildung 6). Von einer Dosisproportionalität kann nicht die Rede sein. Wird für die Neutronenfluß-Dosis-Zuordnung nicht die RBW-Dosis, sondern die Erststoßdosis zugrunde gelegt (mit einem einheitlichen RBW-Wert von 10), dann erhält man eine wesentlich bessere dosisproportionale Empfindlichkeit, die jedoch nur von theoretischer Bedeutung ist (s. Abbildung 7).

Aufgrund der berechneten Nachweiswahrscheinlichkeit läßt sich für den Energiebereich von 0,6 bis 14 MeV eine mittlere Nachweiswahrscheinlichkeit angeben:

⁴ Für Po-Be-Neutronen lag der experimentell festgestellte Unterschied innerhalb des statistischen Auswertefehlers von $\pm 6\%$. Dies stimmt mit den Meßwerten von Hart und Hale [4] überein. Im Gegensatz dazu erhielt Lehmann [8] bei Bestrahlung der Ruckseite 28% mehr Spuren.

Die Erststoßdosis beschrankt sich auf eine Energieabgabe beim ersten Stoß innerhalb eines dünnen Volumenelements des Gewebes. Es wird hierbei vereinfacht angenommen, daß nur elastische Streuung auftritt, daß nur zentrale Stöße vorkommen und daß keine Vielfachstreuung auftritt. Im Gegensatz dazu berücksichtigt die RBW-Dosis eine Vielfachstreuung, d. h. einen build-up-Faktor fur Gewebeschichten bis 30 cm Tiefe, sowie eine unterschiedliche Bewertung der Energieanteile hinsichtlich ihrer biologischen Wirkung.

RBW-Dosis-

Zuordnung: $1,375 \cdot 10^4$ [Spuren/cm² · rem] $\pm 60\%$ Erststoßdosis-

Zuordnung: $1,485 \cdot 10^4$ [Spuren/cm² · rem] $\pm 30\%$

Wegen der veränderlichen Emulsionsdicke kann die berechnete Nachweiswahrscheinlichkeit nur beschränkt für eine praktische Filmauswertung verwendet werden. Der Absolutwert der Nachweiswahrscheinlichkeit kann für jede neue Herstellungsserie experimentell über eine Eichung mit einer bestimmten Energieverteilung gewonnen werden. Eine andere Möglichkeit [8] besteht darin, die Emulsionsdicke und eventuell die Papierschichten jeder neuen Serie nachzumessen und daraus den jeweils vorhandenen Rückstoßprotonenanteil zu bestimmen.

Die für eine 30 µ-Emulsion berechnete Nachweiswahrscheinlichkeit kann allgemein für jede andere Emulsionsdicke sowie für jede andere Emulsionszusammensetzung verwendet werden, wenn eine entsprechende Korrektur erfolgt. Abbildung 8 zeigt die Änderung der Nachweiswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von der Neutronenenergie, wenn der Wasserstoffgehalt der Emulsion um 30% größer ist (z. B. bei einer Emulsionsdicke von ca. 39 μ). Die Emulsionsdicke eines Films kann aus zwei Dickenmessungen vor und nach Ablösen der Emulsion vom Schichtträger mit einer einfachen Meßanordnung, z. B. mit einem Füllhebelmeßgerät (Anzeige 0,001 mm), bestimmt werden. Eine Änderung des Wasserstoffgehalts der Emulsion, die von Film zu Film zu einem Fehler von ca. $\pm 2,5\%$ führen kann, wird hierbei nicht berücksichtigt⁶. Eine Messung der Emulsionsdicke ist einer aufwendigen Eichung unbedingt vorzuziehen, weil hier Eich- und Meßfehler nicht eingehen.

Wird eine bestimmte Energieverteilung zugrunde gelegt (z. B. Po-Be-Neutronen), dann läßt sich für den gesamten Energiebereich ein einfacher Korrekturfaktor bestimmen. Die relative Empfindlichkeitszunahme $\Delta \eta(E)$ ist direkt proportional zur Änderung des Wasserstoffgehalts ΔH , d. h. es ist

$$\frac{\Delta\eta(E)}{\eta(E)} = F(E) \cdot \frac{\Delta H}{H},$$

wie es in Abbildung 8 z. B. für eine Änderung des Wasserstoffgehalts von $\Delta H = 30\%$ dargestellt ist. Für eine bekannte Neutronenenergieverteilung N(E) erhält man eine mittlere Empfindlichkeitszunahme durch Integration aus

$$\begin{pmatrix} \overline{\Delta\eta} \\ \overline{\eta} \end{pmatrix} = \int_{0}^{E_{\max}} \left[\frac{\Delta\eta(E)}{\eta(E)} \right] \cdot N(E) \cdot dE =$$

$$= \frac{\Delta H}{H} \int_{0}^{E_{\max}} F(E) \cdot N(E) \cdot dE = C \cdot \frac{\Delta H}{H} \cdot$$

Für jede vorgegebene Neutronenenergieverteilung läßt sich die mittlere Empfindlichkeitsänderung direkt aus der Änderung des Wasserstoffgehalts der Emulsion bestimmen.

⁶ Waller bestimmte die Zusammensetzung von Ilford-Emulsionen bei 40 verschiedenen Filmen [17].

Atompraxis 9 Heft 5 1963



Abbildung 6. Die Nachweiswahrscheinlichkeit des Kernspurfilms, bezogen auf RBW-Dosis, in Abhängigkeit von der Neutronenenergie bei Bestrahlung der Filmvorderseite. Kurve 1a: $E_p \ge 0.25$ MeV; Kurve 1b: $E_p \ge 0.425$ MeV



Abbildung 7. Die Nachweiswahrscheinlichkeit des Kernspurfilms, bezogen auf Erststoßdosis, in Abhängigkeit von der Neutronenenergie bei Bestrahlung der Filmvorderseite. Kurve 1a: $E_p \ge 0,25$ MeV; Kurve 1b: $E_p \ge 0,425$ MeV, unter Berücksichtigung eines RBW-Faktors von 10



Abbildung 8. Die relative Änderung der Nachweiswahrscheinlichkeit des Kernspurfilms bei Änderung des Wasserstoffgehalts der Emulsion um 30%, bezogen auf eine Emulsionsdicke von 0,030 mm und einen Wasserstoffgehalt von 58,4 mg/cm³, bei Bestrahlung der Vorderseite (v) bzw. der Rückseite (r) des Filmes

Der Korrekturfaktor C ist z. B. für

Spaltneutronen0,48,Po-Be-Neutronen0,3,4 MeV-Neutronen0,26,14 MeV-Neutronen0,08.

In der Praxis kann daher auf eine experimentelle Eichung verzichtet werden, wenn bei jeder neuen Emulsionsserie die Emulsionsdicke gemessen und der entsprechende Korrekturfaktor berücksichtigt wird.

Tabelle 3. Die Neutronenfluß-Dosis-Zuordnung des Kernspurfilms für verschiedene vorgegebene Energieverteilungen

Energieverteilung	Mittl. Neutronenfluß [n/cm ^a · sec] pro Dosisleistung [rem/sec]		Mittlere Nachweis- wahrscheinlichkeit	Mittlere Dosisnachweiswahrscheinlichkeit		
	RBW-Dosis	Erststoßdosis ¹	[Neutron]	RBW-Dosis	Erststoßdosis1	
Spaltneutronen Po-F-Neutronen Po-Be-Neutronen Po-Be-Neutronen Po-Be-Neutronen Pu-Be-Neutronen 4 MeV-Neutronen 14 MeV-Neutronen Energiebereich 0,6 bis 14 MeV 1 bis 10 MeV	$2,84 \cdot 10^{7}$ $2,84 \cdot 10^{7}$ $3,08 \cdot 10^{7}$ $2,6 \cdot 10^{7}$ $2,67 \cdot 10^{7}$ $2,78 \cdot 10^{7}$ $2,6 \cdot 10^{7}$ $2,7 \cdot 10^{7}$ $1,45 \cdot 10^{7}$	$3,4 \cdot 10^{7}$ $3,93 \cdot 10^{7}$ $2,98 \cdot 10^{7}$ $2,43 \cdot 10^{7}$ $2,55 \cdot 10^{7}$ $2,44 \cdot 10^{7}$ $2,5 \cdot 10^{7}$ $2,56 \cdot 10^{7}$ $1,62 \cdot 10^{7}$	$\begin{array}{r} 4,0 \cdot 10^{-4} \\ 3,4 \cdot 10^{-4} \\ 5,1 \cdot 10^{-4} \\ 7,3 \cdot 10^{-4} \\ 6,5 \cdot 10^{-4} \\ 6,8 \cdot 10^{-4} \\ 6,8 \cdot 10^{-4} \\ 7,04 \cdot 10^{-4} \\ 6,45 \cdot 10^{-4} \end{array}$	$1,14 \cdot 10^{4}$ $0,98 \cdot 10^{4}$ $1,53 \cdot 10^{4}$ $1,9 \cdot 10^{4}$ $1,74 \cdot 10^{4} \pm 4\%$ $1,85 \cdot 10^{4}$ $1,78 \cdot 10^{4}$ $1,9 \cdot 10^{4}$ $1,9 \cdot 10^{4}$ $1,375 \cdot 10^{4} \pm 60\%$ $1,51 \cdot 10^{4} \pm 45\%$	$1,35 \cdot 10^{4} \\ 1,32 \cdot 10^{4} \\ 1,60 \cdot 10^{4} \\ 1,67 \cdot 10^{4} \pm 3,5\% \\ 1,75 \cdot 10^{4} \\ 1,7 \cdot 10^{4} \\ 1,7 \cdot 10^{4} \\ 1,8 \cdot 10^{4} \\ 1,05 \cdot 10^{4} \\ 1,485 \cdot 10^{4} \pm 30\%$	

^a Erststoßdosis mal RBW-Faktor von 10

Dosiszuordnung bei vorgegebener Energieverteilung

Eine Eichung mit Po-Be- bzw. Pu-Be-Neutronen führt zu einer mittleren Nachweiswahrscheinlichkeit [Spuren/n] für die jeweilige Energieverteilung. Eine direkte Dosiszuordnung kann experimentell nicht gewonnen werden. Es war bisher üblich, für den gesamten Energiebereich, d. h. unabhängig von der Energieverteilung, für die Dosisleistung 1 rem/sec einen Neutronenfluß von $2,5 \cdot 10^7$ n/cm² · sec anzusetzen [23]. Dies entsprach dem Fall innerhalb des Energiebereichs bis 10 MeV (s. Abbildung 5, RBW-Dosis-Zuordnung bei 1 und 10 MeV), bei dem der Einheitsfluß die höchste RBW-Dosis erzeugt.

Für eine vorgegebene Energieverteilung N(E) erhält man den mittleren Neutronenfluß $\overline{\Phi}$ [n/cm² · sec], der einer Dosisleistung von 1 rem/sec entspricht, zu

$$\overline{\Phi} = \int_{0}^{E_{\max}} \frac{N(E)}{D(E)} \cdot dE \quad \text{mit} \quad \int_{0}^{E_{\max}} N(E) \cdot dE = 1.$$

Hierbei ist N(E) die Energieverteilung einer Neutronenquelle und D(E) die RBW-Dosis-Neutronenfluß-Zuordnung. Um für unterschiedliche Energieverteilungen eine Dosiszuordnung zu finden, wurde über das experimentell bestimmte Spektrum graphisch integriert und ein mittlerer Neutronenfluß pro Dosisleistung berechnet (s. Tabelle 3)7. Es wurde sowohl auf die RBW-Dosis aufgrund der maximal zulässigen Neutronenflußwerte als auch auf die Erststoßdosis bezogen. Um die gleiche Dosis zu erhalten, ist demnach bei Spaltneutronen ein doppelt so großer Fluß notwendig wie bei 14 MeV-Neutronen. Um solche Fehler der Dosiszuordnung bei Eichfilmen und bei Überwachungsfilmen zu vermeiden, ist es sinnvoll, je nach der Art der Eichquelle bzw. je nach dem Überwachungsobjekt (Reaktor, Neutronenquellen, Beschleuniger) einen anderen mittleren Neutronenfluß pro Dosisleistung zu verwenden.

184

Mit der berechneten Nachweiswahrscheinlichkeit $\eta(E)$ und der jeweiligen Energieverteilung N(E) erhält man direkt leine mittlere Dosisnachweiswahrscheinlichkeit d. h. eine auf cm² und rem bezogene Spurendichte aus

$$\overline{\eta} = \int_{0}^{E_{\max}} \eta(E) \cdot rac{N(E)}{D(E)} \cdot \mathrm{d}E$$

Tabelle 3 zeigt solche graphisch ermittelten Werte für verschiedene Neutronenenergieverteilungen. Der NTA-Film ist demnach, bezogen auf die RBW-Dosis, bei Spaltneutronen etwa um den Faktor 2/3, bei 14 MeV-Neutronen um den Faktor 1/2 empfindlicher als bei Po-Be-Neutronen. Für Po-Be-Neutronen erhält man etwa $1,74 \cdot 10^4$ Spuren/cm² · rem. Die Kalibrierung mit einer Po-Be-Quelle von 10 Curie \pm 15% ergab $1,62 \cdot 10^4$ Spuren/cm² · rem.

Die Erststoßdosis entspricht im Energiebereich bis 10 MeV in erster Annäherung der RBW-Dosis (etwa 30% Abweichung). Auf die Problematik der theoretisch bestimmten RBW-Dosen und der ihr zugrunde gelegten RBW-Werte von 3 bis 10 soll hier nicht näher eingegangen werden. Trotzdem ist für eine genaue Dosiszuordnung die RBW-Dosis vorzuziehen, weil sie den tatsächlichen Verhältnissen der Energieübertragung im Gewebe besser Rechnung trägt und weil die Unsicherheit, die bei Annahme einer mittleren Ansprechwahrscheinlichkeit durch den unbekannten Anteil an Neutronen des niederen Energiebereichs entsteht, durch Bezug auf die RBW-Dosis entsprechend vermindert wird. Das gilt um so mehr bei Verwendung des Kernspurfilms als Personendosimeter, wobei, wie noch gezeigt wird, der Einfluß des Körpers für die Dosisbestimmung im unteren Energiebereich eine weitere Unsicherheit bedeutet.

Es ist im allgemeinen nicht sinnvoll, für den gesamten Energiebereich von 0,6 bis 10 MeV eine einzige mittlere Nachweiswahrscheinlichkeit anzusetzen, welche nur mit $\pm 60\%$ angenähert werden kann. In den meisten Überwachungsfällen ist die Energieverteilung der Neutronen annähernd bekannt. Es kann zumindest zwischen folgenden Fällen unterschieden werden:

⁷ Für die experimentell bestimmte Energieverteilung einer Neutronenquelle muß eine gewisse Meßunsicherheit angesetzt werden. Ein Vergleich verschiedener Po-Be-Spektren, welche durch Kernspurplatten, Rückstoßproportionalzähler und Szintillationszähler bestimmt wurden [19, 20, 21], zeigt, daß der Unterschied zwischen den Nachweismethoden unbedeutend ist. Der aus drei verschiedenen Spektren ermittelte Neutronenflußwert/Dosisleistung entspricht mit ±4% dem in der Tabelle angegebenen Wert.

- 1. Die Energieverteilung ist bekannt, wenn an offenen, nicht abgeschirmten und nicht moderierten Neutronenquellen gearbeitet wird. In diesen seltenen Fällen kann die für die jeweilige Neutronenquelle bestimmte Nachweiswahrscheinlichkeit direkt angesetzt werden (s. Tabelle 3).
- 2: Die Energieverteilung ist annähernd bekannt, wenn in der näheren Umgebung einer bekannten, aber abgeschirmten oder moderierten Neutronenquelle gearbeitet wird. In diesem Fall ist die ursprüngliche Energieverteilung bekannt, und es muß die ungünstigste Nachweiswahrscheinlichkeit innerhalb dieser Energieverteilung gewählt werden.
- Die Energieverteilung ist unbekannt. Dann kann man sich wahlweise für die geringste Nachweiswahrscheinlichkeit oder für eine mittlere Nachweiswahrscheinlichkeit des möglichen Energiebereichs entscheiden.

In dieser Reihenfolge läßt sich demnach eine "Neutronendosiseichung" je nach der getroffenen Abschätzung mit einer Genauigkeit von $\pm 5\%$ bis $\pm 60\%$ durchführen. Man muß sich dabei klar werden, daß eine Neutronenflußeichung einen noch größeren Fehler ergeben würde (vgl. Abbildung 3).

Wird die bereits erwähnte Einteilung in einen oberen, einen mittleren und einen unteren Energiebereich zugrunde gelegt, dann erhält man für den NTA-Film folgende Eichwerte:

Reaktorüberwachung	1,1	•10 ⁴ Spuren/cm ² · rem,
Beryllium-Neu- tronen-Quellen	1,8	·10 ⁴ Spuren/cm ² ·rem,
energiereiche Beschleuniger	0,9	•10 ⁴ Spuren/cm ² •rem,
mittlere Nachweis-		

wahrscheinlichkeit 1,35 \cdot 10⁴ Spuren/cm² \cdot rem \pm 33 %.

Die effektive Nachweiswahrscheinlichkeit liegt demnach zwischen 0,9 und $1.8 \cdot 10^4$ Spuren/cm² · rem.

Verbesserung der Nachweiswahrscheinlichkeit für Neutronenenergien über 14 MeV

Der vorliegende Kodak-NTA-Kernspurfilm, Typ A, ist bis etwa 10 MeV annähernd dosisporportional. Mit größer werdender Neutronenenergie fällt die Empfindlichkeit wieder ab. Die Ansprechwahrscheinlichkeit bei energiereichen Neutronen kann dadurch verbessert werden, daß man den Kernspurfilm beiderseitig mit dünnen Polyäthylenradiatoren umgibt, wodurch wesentlich mehr Rückstoßprotonen die Filmemulsion erreichen. Da dieser zusätzliche Rückstoßprotonenanteil nur im oberen Energiebereich erwünschtist, werden Aluminiumfolien bestimmter Dicke zwischen Film und Radiator gelegt. So gelangen nur energiereiche Rückstoßprotonen durch die Aluminiumfolie in die Emulsion. Derartige Filmkombinationen wurden von Che ka [3] beschrieben.

Eine vereinfachte Kombination des ursprünglichen Cheka-Films wurde bis vor kurzem von der Firma Kodak als Kernspurfilm Typ B vertrieben. Zahlreiche Versuche brachten für Po-Be- und für 14 MeV-Neutronen keinen wesentlichen Empfindlichkeitsunterschied zwischen Typ B und Typ A. Dies ist für Po-Be-Neutronen, nicht aber für 14 MeV-Neutronen verständlich, weil die zusätzliche Zellulose- und Aluminiumfolie im oberen Energiebereich einen Empfindlichkeitsanstieg bewirken müßte. Aufgrund der berechneten Nachweiswahrscheinlichkeit ist der Filmtyp A bei 14 MeV um ca. 35% unempfindlicher als die ursprüngliche von Cheka angegebene Filmkombination] [1], während Typ]B und Typ A für Po-Be-Neutronen wie auch für 14 MeV-Neutronen annähernd gleich empfindlich sind. Der Grund hierfür liegt einerseits in der zu geringen Schichtdicke des Radiators vor der Aluminiumfolie bei Typ B, so daß nur ein kleiner Anteil an Rückstoßprotonen durch die Aluminiumfolie die Emulsion erreicht.

Andererseits ist die Schichtdicke des Radiators vor der Emulsion nur 20,7 mg/cm² (bei Typ A sind es 24,8 mg/cm²; s. Tabelle 4), wodurch die Nachweiswahrscheinlichkeit des Typs B geringfügig verringert wird. Die Berechnung ergab etwa 88% der Empfindlichkeit des Typs A, Messungen führten etwa zu 92% bei Po-Beund 94% bei 14 MeV-Neutronen [9] (statistischer Auswertefehler ca. $\pm 5\%$; s. auch [25, 26]).

Tabelle 4. Filmverpackung des Kodak-Kernspurfilms, Typ A und Typ B

	Typ A [mg/cm³]	Typ B > [mg/cm ¹]
Zellulose	24,8	24,2 •
Al-Folie		27
Zellulose	_	20,7
Emulsion	10,9	- 10,9
Schichtträger	25,6	25,6
Al-Folie		27
Zellulose	28	14,2



Abbildung 9. Die Rückstoßprotonenausbeute des Kernspurfilms für verschiedene Filmkombinationen in Abhängigkeit von der Neutronenenergie für $E_p \ge 0.425$ MeV. Kurve 1: Kernspurfilm; Kurve 2: Kombination von 116 mg/cm³ Radiator, 27 mg/cm³ Aluminium, Kernspurfilm, 27 mg/cm³ Aluminium, 116 mg/cm³ Radiator; Kurve 3: Kombination von 116 mg/cm³ Radiator, 54 mg/cm³ Aluminium, Kernspurfilm, 54 mg/cm³ Aluminium, 116 mg/cm³ Radiator.

------ Bestrahlung der Filmvorderseite,

----- Bestrahlung der Filmrückseite

In der Umgebung energiereicher Teilchenbeschleuniger müssen Neutronen wesentlich höherer Energie nachgewiesen werden. Bei einem 50 MeV-Zyklotron (Deuteronen auf Beryllium-Target) sind z. B. Neutronen mit Energien bis zu 50 MeV zu erwarten. Es ist daher grundsätzlich von Interesse, wie empfindlich der Kernspurfilm für Neutronenenergien oberhalb 15 MeV ist. Abbildung 9 zeigt die Rückstoßprotonenausbeute des NTA-Films in Abhängigkeit von der Neutronenenérgie sowie die Ausbeute zweier einfacher Filmkombinationen bei Bestrahlung der Vorder- bzw. der Rückseite. Während die



Abbildung 10. Die Ruckstoßprotonenausbeute verschiedener Radiatoren $(E_p \ge 0.425 \text{ MeV})$ in Abhängigkeit von der Neutronenenergie bei frontaler Bestrahlung. Kurve 1: Dicker Radiator (700 mg/cm³); Kurve 2: Dicker Radiator mit dazwischenliegender Aluminiumfolie von 27 mg/cm³; Kurve 3: Dicker Radiator mit dazwischenliegender Aluminiumfolie von 54 mg/cm³; Kurve 4: Radiator (200 mg/cm³); Kurve 5: Radiator (100 mg/cm³); Kurve 6: Radiator (25 mg/cm³). Filmverpackung Vorderseite



Abbildung 11. Das Verhältnis der Rückstoßprotonenausbeute von zwei verschiedenen dicken Radiatoren in Kombination mit dem Kernspurfilm in Abhängigkeit von der Neutronenenergie, bezogen auf einen Radiator von 25 mg/cm² (einfache Filmverpackung) bei frontaler Einfallsrichtung. Kurve 1: Radiatorverhältnis von 100:25 mg/cm²; Kurve 2: Radiatorverhältnis von 200:25 mg/cm²; Kurve 3: Radiatorverhältnis von 700: 25 mg/cm²

Rückstoßprotonenausbeute durch zusätzliche Radiatoren hauptsächlich im oberen Energiebereich vergrößert wird, erhält man durch Einschalten von Aluminiumfolien zwischen Film und Radiator eine wesentlich günstigere Energieverteilung. Der Empfindlichkeitsanstieg zwischen 6 und 10 MeV kommt einer dosisproportionalen Anzeige zugute. Derartige Filmkombinationen sind bis etwa 30 MeV ebenso empfindlich wie bei Neutronenenergien von 4 MeV [24].

Bei der Bestimmung der Ruckstoßprotonenausbeute oberhalb 10 MeV wurden eine anisotrope Streuung sowie (n, p)-, (n, α)- und (n, 2n)-Reaktionen in der Emulsion nicht berücksichtigt, welche zusätzliche Kernspuren liefern. Oberhalb 12 MeV sind in der Emulsion zahlreiche Kernreaktionen zu erwarten, so z. B. drei α -Sterne aus der Kernreaktion ¹²C (n, n') 3 α . Die angegebene Ruckstoßprotonenausbeute ist demnach keineswegs mit der Nachweiswahrscheinlichkeit identisch. Sie soll nur in erster Annäherung zeigen, wie groß der Rückstoßprotonenanteil im oberen Energiebereich ist.

Bestimmung der mittleren Neutronenenergie

Durch Kombination des NTA-Films mit verschieden starken Polyäthylenradiatoren erhält man eine unterschiedliche Rückstoßprotonenausbeute. Abbildung 10 zeigt den Rückstoßprotonenanteil eines dicken Radiators mit einer zwischengelagerten Aluminiumfolie von 0,1 mm bzw. von 0,2 mm Dicke sowie den Rückstoßprotonenanteil für Radiatorstärken von 25 mg/cm² (Filmverpackung), 100 und 200 mg/cm² in Abhängigkeit von der Neutronenenergie.

Wenn zwei Messungen mit verschiedenen Radiatorstärken durchgeführt werden, dann kann man aus dem Verhältnis der erhaltenen Rückstoßprotonenanteile auf eine mittlere Neutronenenergie schließen. Wird auf den Rückstoßprotonenanteil des einfachen NTA-Films bezogen (Schichtstärke etwa 25 mg/cm²), dann erhält man für das Verhältnis der Rückstoßprotonenanteile eine Energieabhängigkeit, wie sie in Abbildung 11 für einen Radiator von 100, 200 und 700 mg/cm² dargestellt wurde. Diese Methode ist nur für Neutronenenergien oberhalb 5 MeV anwendbar und beschränkt sich auf eine definierte Neutroneneinfallsrichtung. Die Anwendung auf eine bestimmte Energieverteilung und insbesondere der Einfluß eines unterschiedlichen Neutronenanteils unterhalb 5 MeV sowie die Frage, wie weit eine Messung im diffusen Strahlungsfeld über eine rotierende Meßanordnung möglich ist, muß experimentell entschieden werden.

Tabelle 5. Experimentelle Bestimmung des Verhältnisses der Rückstoßprotonenausbeute von zwei verschieden dicken Radiatoren in Kombination mit dem Kernspurfilm bei 14 MeV-Neutronen

.Kombination	Spuren/ Gesichtsfeld	Meßwert	ɛ/ɛ₀-Berechnung	
Film	6,5±7,1%	1	1	
1 mm-Radiator + 0,1 mm Al + Film	16,8±5,7%	2,58	2,02	
1 mm-Radiator + 0,2 mm Al + Film	- 12,4 ± 5,8%	1,91	1,61	
1 mm-Radiator + Film	17,6 ± 5,7%	2,71	2,79	
2 mm-Radiator + Film	20 , 2±5 %	3,11 ·	3,1	
3 mm-Radiator + Film	19,2±5,9%	2,96	3,1	
6 mm-Radiator + Film	19 ± 5,1%	2,93	3,1	

Tabelle 5 zeigt Meßwerte, die für verschiedene Radiatorstärken mit 14 MeV-Neutronen erhalten wurden. Ein 2 mm dicker Radiator ist demnach schon ausreichend, um eine maximale Rückstoßprotonenausbeute zu erhalten.

Personendosimetrie mit Kernspurfilmen

Wird bei der Personenüberwachung das Dosimeter am Körper getragen, werden die Messungen dadurch unsicher, daß der einfallende Neutronenfluß durch den

Körper selbst zum Teil abgeschirmt, z. T. rückgestreut wird, wodurch das ursprüngliche Neutronenfeld am Ort des Dosimeters grundsätzlich verändert ist.

Der Einfluß von Abschirmung und Rückstreuung ist sehr veränderlich, er schwankt mit der zufälligen Stellung von Dosimeter und Körper zur Neutroneneinfallsrichtung sowie mit der jeweiligen Neutronenenergieverteilung. Die mit dem Dosimeter festgestellte Dosis wird größer oder kleiner sein als die tatsächliche Personendosis, wenn der Dosimeterträger von vorne oder von rückwärts einer Strahlung ausgesetzt war. Unabhängig davon zeigt schon der einfache NTA-Film eine ausgeprägte Richtungsabhängigkeit (s. Tabelle 2).

Die Nachweiswahrscheinlichkeit des NTA-Films ist für verschiedene Bestrahlungsrichtungen (Bestrahlung der Vorderseite, der Rückseite, parallel zur Filmebene, bei rotierendem Film) und für verschiedene Neutronenenergien experimentell bestimmt worden. Um den Einfluß einer Abschirmung und Rückstreuung festzustellen, wurden Bestrahlungen mit einem Phantom durchgeführt [3, 4, 18]⁸. Als Phantom wurde eine Polyäthylen-Kunststoffflasche von 28 cm Durchmesser verwendet, die mit Wasser aufgefüllt war. Die Nachweiswahrscheinlichkeit des Filmdosimeters ist einerseits von der Phantomgröße bzw. dem Phantomdurchmesser, andererseits vom Phantomabstand abhängig. Im vorliegenden Fall wurden bewußt ungünstige Verhältnisse gewählt, nämlich ein maximaler Phantomdurchmesser, welcher dementsprechend eine maximale Abschirmung ergibt, sowie ein Abstand von 1,5 cm des Filmdosimeters vom Phantom, wodurch der Einfluß der Körperrückstreuung wie auch der aus dem Phantom einfallende Rückstoßprotonenanteil bei höheren Neutronenenergien klein gehalten wird.

Die Nachweiswahrscheinlichkeit des Filmdosimeters wurde für Po-Be-Neutronen und für 14 MeV-Neutronen experimentell bestimmt. In Abbildung 12 ist die relative Dosimeteranzeige, bezogen auf eine frontale Freiluftbestrahlung, in Abhängigkeit von der Strahleneinfallsrichtung dargestellt. Bei frontaler Phantombestrahlung, Stellung 1 ($\alpha = 0^{\circ}$), wird ein Rückstreuanteil von 32%bei Po-Be-Neutronen und von 8% bei 14 MeV-Neutronen festgestellt. Dieser Rückstreuanteil verringert sich mit größer werdendem Einfallswinkel. Bei Stellung 2 $(\alpha = 90^{\circ})$ ist die Abnahme der Nachweiswahrscheinlichkeit hauptsächlich auf die Richtungsabhängigkeit des Filmdosimeters selbst zurückzuführen (s. Tabelle 2). Bei Stellung 3 ($\alpha = 180^{\circ}$) ist der Einfluß der Abschirmung sehr energieabhängig. Die direkte Abschirmung (elastische Streuung) der Primärneutronen kann durch die Relaxationslänge wiedergegeben werden (diese ist 7,2 cm bei Po-Be-Neutronen und 14 cm bei 14 MeV-Neutronen). Hinzu kommt ein Anteil an vielfachgestreuten Neutronen (build-up-Anteil). Andererseits zeigt das Filmdosimeter bei Bestrahlung der Rückseite eine größere Nachweiswahrscheinlichkeit für Primärneutronen oberhalb 5 MeV. Es ist daher verständlich, daß die energiereichen 14 MeV-Neutronen hinter dem Phantom mit 58 %, die Po-Be-Neutronen hingegen nur mit 19% nachgewiesen werden. Der Phantomdurchmesser geht hier merklich



Abbildung 12. Die relative Dosimeteranzeige bei einer Phantombestrahlung in Abhangigkeit von der Strahleneinfallsrichtung, bezogen auf eine frontale Freiluftbestrahlung für einen Abstand Phantom-Dosimetervon 1,5 cm.

x-x-x- Po-Be-Neutronen o-o-o- 14 MeV-Neutronen

 Meßwerte von Cheka [3] für Po-Be-Neutronen und einen Phantomdurchmesser von 16 cm.

 $\alpha = 0$ [•]: Bestrahlung auf Filmvorderseite, Dosimeter vor dem Phantom; $\alpha = 90$ [•]: Bestrahlung in Filmebene, Dosimeter seitlich vom Phantom; $\alpha = 180$ [•]: Bestrahlung auf Filmrückseite, Dosimeter hinter dem Phantom



Abbildung 13. Der Mittelwerteines Zweidosimetersystems in Abhängigkeit von der Neutroneneinfallsrichtung, bezogen auf eine frontale Freiluftbestrahlung für x-x-z- Po-Be-Neutronen und 0-0-0- 14 MeV-Neutronen

in das Meßergebnis ein, weil er von gleicher Größenordnung ist wie die Relaxationslängen. Die Meßwerte für Po-Be-Neutronen stimmen mit den Angaben von Cheka [3] (16 cm Durchmesser, Paraffin-Phantom) gut überein.

Der Einfluß von Rückstreuung, Vielfachstreuung und Absorption auf die Nachweiswahrscheinlichkeit des Dosimeters läßt demnach keine genaue Personendosisbestimmung zu. Je nach der Energieverteilung der ursprünglichen Neutronen und der zufälligen Strahleneinfallsrichtung kann die Dosimeteranzeige bei 14 MeV-Neutronen von 58% bis 108%, bei Po-Be-Neutronen von 19% bis 132% und bei Po-B-Neutronen [3] von 7,6% bis 130% unterschiedlich sein. Eine einfache Überlegung zeigt, daß die Verwendung von zwei Dosimetern (die z. B. an der Vorder- und Rückseite des Körpers getragen werden), wesentlich bessere Nachweisverhältnisse bringt. In Abbildung 13 ist der Mittelwert beider Dosimeteranzeigen, bezogen auf eine frontale Freiluftbestrahlung, in Abhängigkeit von der Neutroneneinfallsrichtung für 14 MeV-Neutronen und für Po-Be-Neutronen dargestellt.

Mit einem Zweidosimetersystem werden demnach folgende Nachweiswahrscheinlichkeiten erreicht:

[•] In neuester Zeit wurden Phantombestrahlungen mit monoenergetischen Neutronen durchgefuhrt [18].

Tabelle 6. Der Einfluß der Strahleneinfallsrichtung sowie des Körpers auf die Anzeige des Dosimeters für Po-Be-Neutronen und 14 MeV-Neutronen

, .,	Phantombestrahlung			Freiluftbestrahlung				
	Vorderseite	Rückseite	Filmebene	rotierend	Vorderseite	Rückseite	Filmebene	rotierend
Po-Be- Neutronen	132,5±5,7%	18 , 7 ± 8,7%	65,6±5,2%	65 , 5%	100%	100 ± 6%	52,7 ± 5,9%	76,4%
14 MeV- Neutronen	108 ± 6%	58±7,3%	76,6±6,9%	76,3%	100%	$139 \pm 4,6\%$	69 ± 5 ,4%	94,5%

14 MeV-Neutronen 78,5 % \pm 3,5 %, Po-Be-Neutronen 68 % \pm 8,5 %.

Bei einem Phantom mit elliptischem Querschnitt und unterschiedlicher Größe wird die Dosimeteranzeige, insbesondere die maximale Meßungenauigkeit, in der gleichen Größenordnung liegen.

Eine andere Möglichkeit, den Einfluß der Körperabschirmung und Rückstreuung annähernd auszuschließen, ist nur für größere Neutronenenergien denkbar, deren Relaxationslängen Körperdimensionen entsprechen. Hier kann die Richtungsabhängigkeit des Dosimeters durch zusätzliche wasserstoffhaltige Schichten vergrößert und die direkte Dosimeteranzeige verbessert werden.

Nur in den seltensten Fällen liegt eine definierte Neutroneneinfallsrichtung vor. Es ist daher zweckmäßig, einen richtungsunabhängigen Eichwert zu benutzen, den man z. B. durch eine rotierende Anordnung erhält [4] (s. Tabelle 6). Die Meßwerte der Phantombestrahlung (s. Abbildung 12) ergeben eine mittlere richtungsunabhängige Empfindlichkeit von 65,5% für Po-Be-Neutronen und 76,3% für 14 MeV-Neutronen⁹. Für eine Freiluftbestrahlung erhält man als mittlere richtungsunabhängige Nachweiswahrscheinlichkeit etwa 76,4%für Po-Be-Neutronen und 94,5% für 14 MeV-Neutronen. Hart und Hale [4] erhielten mit einer rotierenden. Anordnung für Po-Be-Neutronen ohne Phantom einen Eichwert von 79%, mit Phantom einen Wert von 66,8%der Bestrahlung auf die Filmvorderseite.

Die Bestimmung einer Ortsdosis ist mit einem geringeren Aufwand und einer größeren Meßgenauigkeit zu erreichen, weil hier keine Rückstreu- und Absorptionsfehler auftreten können und weil in den meisten Fällen die Neutroneneinfallsrichtung bekannt ist. Bei einer diffusen Strahlung muß die Richtungsabhängigkeit des Films berücksichtigt werden. In diesem Fall kann eine mittlere Nachweiswahrscheinlichkeit angesetzt werden, welche durch eine rotierende Eichanordnung erhalten wird. Wird eine rotierende Meßanordnung benutzt, dann läßt sich die Ortsdosis auch bei unbekannter Einfallsrichtung bestimmen.

Der Nachweis schneller Neutronen mit Kernspurfilmen kann bei bekannter Strahleneinfallsrichtung und bei bekannter Neutronenenergieverteilung zu einer Ortsdosisbestimmung herangezogen werden. Verwendet man eine rotierende Eich- und Meßanordnung, dann läßt sich auch die Ortsdosis innerhalb eines diffusen Strahlenfeldes bestimmen. Der NTA-Film kann aber, im ganzen gesehen, keineswegs als ein ideales Personendosimeter bezeichnet werden. Hierfür sind die Meßunsicherheiten zu groß, und die mikroskopische Auswertung ist zu mühselig. Es gibt leider noch keine anderen Nachweismethoden mit einer vergleichbaren Empfindlichkeit. Die Personendosimetrie wird daher weiterhin auf den Kernspurfilm zurückgreifen müssen. Man sollte jedoch die Meßmöglichkeiten nicht überschätzen. Ihnen sind hauptsächlich durch den Einfluß des Körpers grundsätzliche Grenzen gesetzt.

Herrn Dr. Raspanti vom Institut für Radiochemie danke ich für die Durchführung der Wasserstoffbestimmungen, Herrn Dr. Eyrich und Herrn Dipl.-Phys. Reichardt vom Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik für die Bestrahlungen mit dem Neutronengenerator. Ferner danke ich meinen Mitarbeiterinnen Frau Reddmann und Fräulein Gagelmann für ihre Mithilfe bei der Durchführung der Messungen.

Literatur

- [1] Cook J. E.: A.E.R.E. HP/R 2744 (1958)
- [2] Watson E. C.: HW-21552 (1951)
- [3] Cheka J. S.: Nucleonics 12, 40 (1954)
- [4] Hart R. S. and Hale J. P.: NAA-SR-1536 (1956)
- [5] Handloser J.: BNL-430, 533 (1957)
- [6] NBS Handbook 62, 60 (1959)
- [7] NBS Handbook 75, 40 (1961)
- [8] Lehmann R. L.: UCRL-9513 (1961)
- [9] Dresel H.: Kerntechnik 3, 498 (1961)
- [10] Kiefer H. und Piesch E.: Vortrag Deutsche Atomkommission, Arbeitskreis IV/2, Januar 1962
- [11] Becker K.: Atomkernenergie 8 (1963), im Druck
- [12] Eyrich W.: Nukleonik 4, 167 (1962)
- [13] Barshall H. H. et al.: Rev. Mod. Phys. 24, 1 (1952)
- [14] Hurst G. S., Ritchie R. H. and Wilson H. N.: Rev. Sci. Instr. 22, 981 (1951)
- [15] Dennis J. A. and Loosemore W. R.: A.E.R.E. EL/R 2149 (1957)
 [16] Rich M. and Madey R.: UCRL-2301 (1954)
- [17] Shapiro M. M.: Hdb. d. Physik, Bd. 45, Springer-Verlag, S. 342 (1958)
- [18] Becker K.: Priv. Mitteilung (1962)
- [19] Whitmore B. G. and Baker W. B.: Phys. Rev. 78, 799 (1950)
- [20] Breen J. R., Hertz M. R. and Wright D. U.: MLM-1054 (1956)
- [21] Murray R. B.: Nuclear. Instr. 2, 237 (1958)
- [22] Cramberg L., Fryer G., Neresen N. and Rosen L.: Phys. Rev. 103, 662 (1956)
- [23] Dresel H.: Kerntechnik 2, 239 (1960)
- [24] Piesch E.: Diskussionsbeitrag ENEA-Symposium, Madrid, April 1963
- [25] Hagsgård S. and Widelt C. O.: IAEA-Symposium, Harwell, Dez. 1962
- [26] Portal G.: ENEA-Symposium, Madrid, April 1963

Anschrift des Verfassers: Dipl.-Phys. E. Piesch, Leopoldshafen, Max-Planck-Str. 6

 $[\]bullet$ In Übereinstimmung mit experimentellen Meßwerten bei rotierender Meßanordnung \cdot

Zur Dosimetrie schneller Neutronen mit Kernspurfilmen Bei der Dosimetrie schneller Neutronen mit Kernspurfilmen treten folgende methodische Probleme auf: 1. Abhängigkeit der Spurenzahl von der Neutronenenergie; 2. Zuordnung der Spurenzahl zur Dosis; 3. Einfluß des Körpers auf die Anzeige des Personendosimeters; 4. Anwendungsmöglichkeit des Kernspurfilms für Neutronenenergien oberhalb 14 MeV. In der vorliegenden Arbeit wurde die Nachweiswahrscheinlichkeit und die Dosiszuordnung in Abhängigkeit von der Neutronenenergie abgeleitet und die Ergebnisse auf verschiedene bekannte Neutronenspektren sowie auf beliebige Energieverteilungen angewandt. Experimentell wurde mit Hilfe eines Phantoms der Einfluß des Körpers auf die Dosisermittlung bestimmt. Daraus ergeben sich Abschätzungen Über die methodischen Fehlergrenzen bei der Verwendung des Kernspurfilms zur Neutronendosimetrie.

Dosimetry of Fast Neutrons with Nuclear Track Films

In the dosimetry of fast neutrons with nuclear track films, the following methodological problems arise: 1. dependence of track number upon neutron energy; 2. co-ordination of track number and dose; 3. influence of the body on the reading of the personal dosimeter; 4. possibility of using nuclear track film for neutron energies of over 14 MeV. In the present article the demonstrational probability and dose co-ordination are derived in their relation to neutron energy, and the results are applied to various known neutron spectra as well as to a random sampling of energy distributions. The influence of the body on dose determination was ascertained experimentally with the aid of a dummy. From this, estimates were made of the margins of methodological error in using nuclear track films for neutron dosimetry.

La dosimétrie de neutrons rapides au moyen de films à traces nucléaire Lors de la dosimétrie de neutrons rapides au moyen de films à traces nucléaires se posent les problèmes méthodiques suivants: 1. Variation du nombre de traces en fonction de l'énergie des neutrons; 2. la mise en relation du nombre de traces avec la dose; 3. influence du corps sur l'indication du dosimètre; 4. possibilité d'application du film à traces nucléaires aux énergies neutroniques dépassant 14 MeV. Dans ce travail la probabilité de détection et la mise en relation de la dose en fonction de l'énergie neutronique sont élaborées et les résultats sont appliqués à divers spectres neutroniques connus, ainsi qu'à des répartitions d'énergie quelconques. De manière expérimentale a été déterminée à l'aide d'un fantôme l'influence du corps sur la détermination de la dose. Il en ressort des évaluations sur les limites d'erreurs méthodiques lors de l'application des films à traces nucléaires pour la dosimétrie neutronique.