

KFK-361

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Juni 1965

KFK 361

Abteilung Strahlenschutz/Strahlenmeßdienst

Messung der Neutronendosis im Katastrophenfall

E. Piesch

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
in der Helmholtz-Gemeinschaft
Hauptabteilung Bibliothek und Medien



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Messung der Neutronendosis im Katastrophenfall

Measurement of neutron dose under the conditions of an accident

Von E. Piesch Strahlenmeßdienst, Kernforschungszentrum Karlsruhe

1. Einleitung

Eine außerhalb der routinemäßigen Personen- und Ortsdosimetrie eigenständige Meßaufgabe ergibt sich nach einem unvorhergesehenen Kritischwerden beim Hantieren mit spaltbarem Material oder bei der Herstellung von Kernbrennstoffen wie Pu 239 und U 235, nach einem unkontrollierten Durchgehen eines Reaktors oder nach einer ausgelösten Kernexplosion. Zu solchen Katastrophensituationen werden vom Standpunkt des Strahlenschutzes auch kleinere Zwischenfälle gezählt, bei denen einzelne Personen wegen Unachtsamkeit oder wegen unwissentlichen Verschuldens anderer bei Arbeiten an hochenergetischen Teilchenbeschleunigern oder Neutronengeneratoren direkt in größerem Umfang einer von außen einwirkenden Strahlung ausgesetzt wurden. Denkbar sind ferner konventionelle Unfälle in kern-technischen oder kernverfahrenstechnischen Anlagen (wie Feuer, Explosion), in deren Gefolge ein Kritischwerden von spaltbarem Material auftreten kann.

2. Strahlungsbelastung bei einem Unfall

Die Anzahl der bei einem Unfall unkontrolliert und kurzzeitig auftretenden Kernspaltungen kennzeichnen die Quellstärke der entstehenden Neutronenstrahlung und geben damit die Größe der Neutronenfluenz. Eine Moderierung der Spaltneutronen durch Lösungsmittel oder wasserstoffhaltige Substanzen, die jeweilige geometrische Anordnung oder eine zufällige Abschirmung des spaltbaren Materials kennzeichnen hingegen die Neutronenenergieverteilung sowie die Intensität der dabei auftretenden prompten γ -Komponente am Meßort. Die gesamte Strahlenbelastung einer Person ist demnach nicht nur von der Entfernung zum Strahlungszentrum abhängig, sondern auch von zufällig auf dem Weg zwischen Person und Zentrum liegenden Moderatoren und Abschirmungen. Außerdem wird die Größe der γ - und n-Dosis-Komponenten von der Aufenthaltsdauer der Person in unmittelbarer Nähe der kritischen Anordnung, vom schnellen Verlassen oder wiederholten Betreten eines nach dem Kritischwerden mit γ -Aktivitäten kontaminierten Unfallraumes beeinflusst. Sie können daher von Person zu Person um Größenordnungen unterschiedlich groß ausfallen. Zwar läßt sich für ein unkontrolliertes Durchgehen eines Reaktors bekannter Anordnung und Moderierung die in einem bestimmten Abstand vom Zentrum resultierende Ortsdosis abschätzen oder experimentell bestimmen, wie dies in Abb. 1 für eine unmoderierte Reaktorordnung dargestellt ist. Demgegenüber wird aber die tatsächliche Bestrahlungsdosis einer Person durch von außen einwirkende Strahlung nicht nur vom Aufenthaltsort, sondern auch von der Körperorientierung und von der Neutronenenergieverteilung sowie vom Verhältnis der Neutronen- zur γ -Komponente hinter zufälligen Abschirmungen abhängen.

Sicherheitsberichte und Katastrophenpläne können nur prinzipielle Methoden darlegen, die im Bedarfsfall anzuwenden sind. Zur Bestimmung einer Personendosis müssen nach einem Unfall daher spezielle Personendosimeter ausgewertet, aber auch die Aktivierung von körpereigenen Substanzen und Gegenständen sowie Ortsdosimeter zur Auswertung herangezogen werden, die zusätzlich notwendige Aussagen über die Neutronenenergieverteilung sowie über die Körper-

orientierung gestatten. Im folgenden werden speziell solche Meßmethoden beschrieben, die bei einem Unfall trotz gleichzeitig vorhandenem hohem γ -Strahlungspegel eine Abschätzung der von Neutronen unbekannter Energie resultierenden Personendosis ermöglichen.

Eine Hauptaufgabe der Katastrophendosimetrie besteht darin, aus der durch Neutronen verursachten Aktivierung bestimmter Stoffe auf die Neutronenfluenz und damit auf eine Dosis zu schließen. Unter Aktivierung wird dabei das zeitliche Integral einer Aktivität verstanden. Tab. 1 zeigt den theoretischen Zusammenhang zwischen einer experimentell gewonnenen Neutronenfluenz und einer zu bestimmenden Neutronendosis. Im Gegensatz zur Routinedosimetrie wird zunächst die Energiedosis bestimmt. Ein Personendosimeter wird an der Körperoberfläche eine von außen wirkende γ -Strahlung, aber auch eine durch die Reaktion ${}^1\text{H}(n, \gamma){}^2\text{D}$ im Körper entstehende Einfang- γ -Strahlung nachweisen. Als Neutronendosis wird daher nur der durch schwere geladene Teilchen übertragene Energieanteil (Rückstoßkerne und Reaktion ${}^{14}\text{N}(n, p){}^{14}\text{C}$) der Energiedosis angesehen (Abb. 2) [4]. In vielen Fällen werden die Messungen nur auf eine FC-Energiedosis bezogen. Je nach den Erfordernissen kann ein Qualitätsfaktor entsprechend der jeweiligen Körperbestrahlung (Teilkörper, Ganzkörper oder kritisches Organ, Augenlinse) zugrunde gelegt werden, der für eine einmalige Kurzzeitbestrahlung gilt und für eine Ganzkörperbestrahlung 1 bis 2 beträgt [6, 7]. Diese Qualitätsfaktoren unterscheiden sich von den z. Z. allgemein zur Bestimmung von Dosisäquivalenten zugrunde gelegten Qualitätsfaktoren [8], weil für die Routinedosimetrie eine chronische Strahlenbelastung und damit zusätzliche Sicherheitsfaktoren berücksichtigt werden. Da sowohl die Nachweisempfindlichkeit von Sonden als auch die Neutronenfluenz-Dosis-Zuordnung (FC-Energiedosis

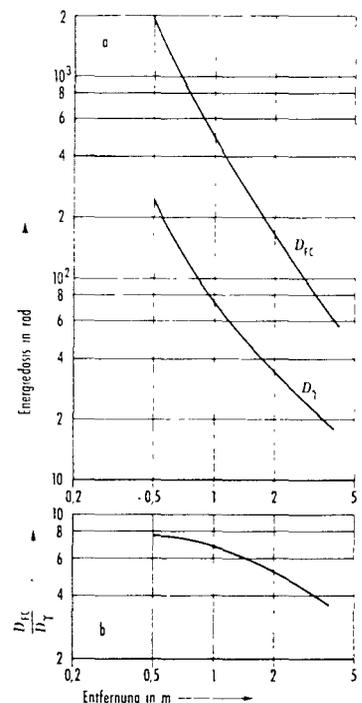


Abb. 1 Die experimentell bestimmte FC-Energiedosis und die γ -Dosis (a) sowie das Dosisverhältnis D_n/D_γ (b) des Sandia Pulsed Reactor (SPR) in Abhängigkeit von der Entfernung zum Zentrum. Es handelt sich um eine unmoderierte ${}^{235}\text{U}$ -Anordnung für $2 \cdot 10^{16}$ Spaltreaktionen pro $50 \mu\text{s}$ Pulsdauer, 150 cm über dem Boden. Nach [1].

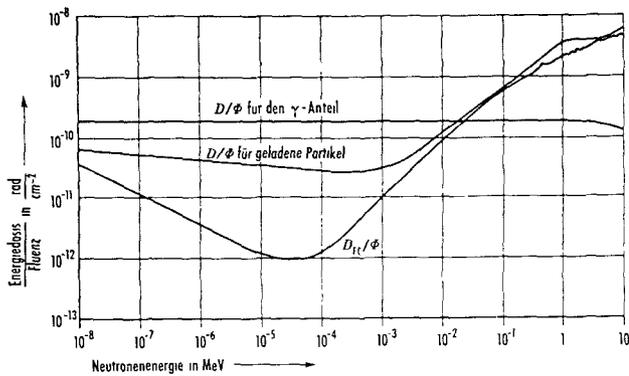


Abb. 2. Verhältnis der Energiedosis und der FC-Energiedosis zur Neutronenfluenz in Abhängigkeit von der Neutronenenergie

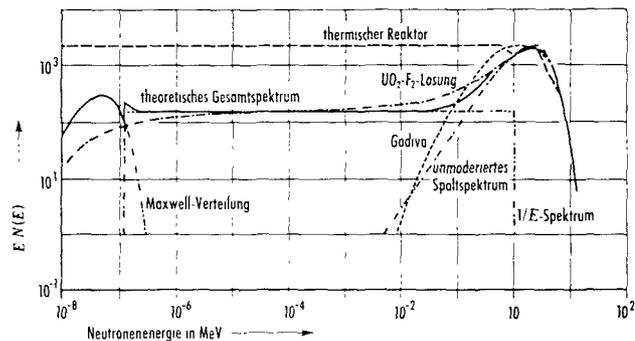


Abb. 3. Angenäherte Neutronenspektren verschiedener kritischer Anordnungen Nach [2]

oder Energiedosis oder Dosisäquivalent) von der Energie der Neutronen abhängt, muß die Energieverteilung der Neutronen bekannt sein oder auf Grund zusätzlicher Messungen abgeschätzt werden. Wird bei einem Kritischwerden von einer Abschirmung und Rückstreuung der Neutronen in der näheren Umgebung der Anordnung bzw. am Ort der Person abgesehen, dann läßt sich für die entsprechende kritische Anordnung eine angenommene Energieverteilung zugrundelegen (Abbildung 3). Für einen speziellen Unfall können dieses Spektrum und die daraus bestimmten Personendosen jedoch recht unterschiedlich ausfallen (Tab. 2). Die Forderungen an ein Personendosimeter werden daher insofern erweitert, als es neben einem Dosismesswert auch das Neu-

Tab. 1: Bestimmung des Dosisäquivalents von Neutronen aus Meßwerten der Sondenaktivierung und einer Na-23-Aktivierung des Körpers

$$\text{Dosisäquivalent: } D_e = \phi \int_0^{\infty} D_0(E) Q(E) N(E) dE$$

$$\text{Sondenaktivierung } A_s = N_t \phi \int_0^{\infty} \sigma_a(E) N(E) dE,$$

$$D_e = a A_s$$

$$\text{Körperaktivierung: } A_k = c \phi \int_0^{\infty} \xi(E) N(E) dE,$$

$$D_e = b A_k$$

Bedeutung der Symbole:

$$a = \frac{\int_0^{\infty} D_0(E) Q(E) N(E) dE}{N_t \int_0^{\infty} \sigma_a(E) N(E) dE}$$

$$b = \frac{\int_0^{\infty} D_0(E) Q(E) N(E) dE}{c \int_0^{\infty} \xi(E) N(E) dE}$$

Bestimmung durch Kalibrierung bzw. Berechnung

- ϕ Neutronenfluenz,
- A_s Aktivierung der Sonde,
- A_k Na-24-Aktivierung des Körpers,
- $D_0(E)$ Verhältnis von Energiedosis zu Fluenz,
- $Q(E)$ Qualitätsfaktor für Neutronen,
- $N(E)$ Neutronenspektrum,
- $\sigma_a(E)$ Wirkungsquerschnitt für Aktivierung,
- N_t Anzahl der Targetatome des zu aktivierenden Nuklids,
- $\xi(E)$ Neutroneneinfangwahrscheinlichkeit im Körper,
- c Konstante

tronenspektrum am tatsächlichen Bestrahlungsort der betreffenden Person angenähert bestimmen soll. Es werden daher mehrere Sonden verwendet, welche in verschiedenen Energiebereichen ansprechen, wobei die Sondenaktivierung selbst zur Abschätzung des Spektrums herangezogen wird. Um das Spektrum möglichst genau anzunähern, werden außer speziellen Dosimetern alle irgendwie meßtechnisch zugänglichen Informationen in Betracht gezogen, z. B. die Aktivierung von Ringen, Uhren, Geldmünzen, Schmuckstücken, Zahnfüllungen.

Tab. 2: Die charakteristischen Dosisanteile verschiedener kritischer Anordnungen [3, 5, 9, 10]

Kritische Anordnungen oder Unfälle	Verhältnis der thermischen zur schnellen Fluenz	D_γ/D_{FC}	D_{FC}/ϕ 10^9 rad/cm^2	D/ϕ an der Körperoberfläche		Verhältnis der äußeren γ -Energiedosis zur Fluenz 10^9 rad/cm^2	Verhältnis der im Gesamtblut induzierten Na-24-Aktivitätskonzentration zur Fluenz $10^{15} \mu\text{Ci cm}^{-3}/\text{cm}^{-2}$
				geladene Teilchen 10^9 rad/cm^2	$^1\text{H} (n, \gamma)^2\text{D}$ 10^{10} rad/cm^2		
Godiva II (1956)							
U-235-Metall, unmoderiert	0,09	~ 0,1	2,21	2,98	1,90	0,180	7,52
Y-12 (1958)							
Lösung von $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$	0,45	2,8	1,71	2,21	1,91	4,780	6,31
Los Alamos (1958)							
Lösung von $\text{Pu}(\text{NO}_3)_2$	0,60	8,8	1,30	1,64	1,95	11,49	5,47
Vinča (1958)						0,548	
D_2O -moderierter Reaktor	1,14	3,8	0,24	0,338	2,00	0,482	4,18

3. Neutronendosimetrie mittels Aktivierungs sonden

3.1 Grundsätzliches

Die hierbei gestellte meßtechnische Aufgabe, die Neutronendosis einer Person bei unbekannter Neutronenenergie unmittelbar zu bestimmen, wird heute meßtechnisch weder durch ein Routinedosimeter noch durch ein Katastrophendosimeter befriedigend gelöst [9].

Durch das Fehlen eines eigentlichen Neutronen-Routinedosimeters wird es notwendig, anschließend an einen Unfall aus bleibenden meßtechnisch feststellbaren Veränderungen bestimmter Elemente auf eine Strahlenbelastung zu schließen. Hierbei eignen sich vor allem solche durch Neutronen ausgelöste Kernreaktionen, bei denen instabile Nuklide entstehen, die selbst wieder unter Aussendung von β -Teilchen oder γ -Quanten mit einer definierten Halbwertszeit zerfallen.

Zur meßtechnischen Ausnutzung von (n, γ) -, (n, β) -, $(n, 2n)$ -, (n, f) -Reaktionen werden Resonanz- oder Schwellwertsonden verwendet (Abb. 4). Aktivierungs sonden eignen sich wegen ihrer relativen Unempfindlichkeit in den meisten Fällen nur zur Unfall dosimetrie, wegen ihres relativ großen Umfanges können viele außerdem nur als Ortsdosimeter verwendet werden. Die Empfindlichkeit der wichtigsten Sonden gegenüber thermischen Neutronen, gegenüber Neutronen mit einem 1/E-Spektrum sowie gegenüber Spaltneutronen ist in Tab. 3 und 4 wiedergegeben.

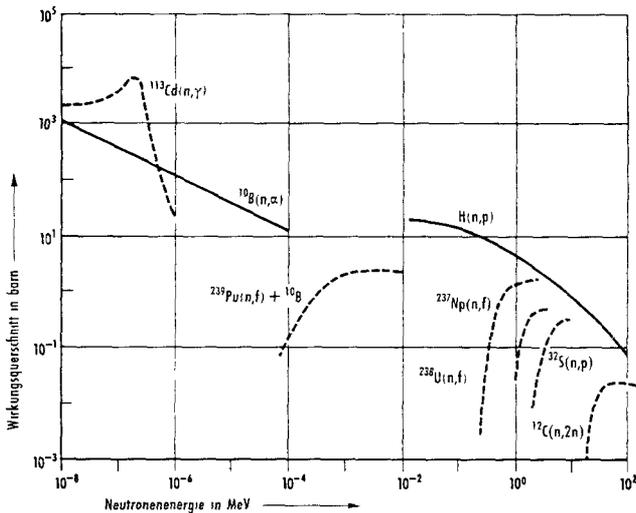


Abb. 4 Der Wirkungsquerschnitt verschiedener Neutronennachweisreaktionen in Abhängigkeit von der Neutronenenergie

3.2 Spezielle Aktivierungsmeßmethoden

3.2.1 Bestrahlungsindikator

An eine Unfalldosimetrie wird die spezielle Forderung gestellt, so genau wie möglich, aber auch so schnell wie möglich eine Dosisangabe zu liefern. Die Auswahl einzelner Personen aus dem vom Unfall betroffenen Personenkreis wird durch Schnellmethoden erreicht. Als Bestrahlungsindikator werden Aktivierungsfolien mit kleiner Halbwertszeit, insbesondere In 116 verwendet, dessen β -Aktivität mit einem einfachen Handgerät (Geiger-Müller-Zählrohr, Proportionalzählrohr, Ionisationskammer) festgestellt wird. Eine genaue Dosisbestimmung ist vor allem wegen des unterschiedlichen γ -Dosis-Anteils nicht möglich, man kann jedoch annehmen, daß direkt nach einem Unfall eine induzierte spezifische Aktivität von $2,9 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1} \text{ g}^{-1}$ für eine gesamte Energiedosis von 25 rad erhalten wird [2].

Tab. 3: Eigenschaften verschiedener Sonden zum Nachweis thermischer und mittelschneller Neutronen

Der Energiedosis 1 rad entspricht bei thermischen Neutronen die Fluenz $1,59 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, bei 1/E-Neutronen die Fluenz $2,81 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$.

Nach [2]

Kernreaktion	Resonanzenergie eV	Halbwertszeit	Emission pro Zerfall	Verhältnis der induzierten spezifischen Aktivität zur Energiedosis $\text{min}^{-1} \text{g}^{-1} \text{rad}$	
				1/E-Neutronen	thermische Neutronen
$^{113}\text{In}(n, \gamma) \text{ } ^{116}\text{In}^m$	1,45	54 min	0,6 MeV β^- , 100%	$2,4 \cdot 10^7$	$1,5 \cdot 10^8$
			1,27 MeV γ , 75%	$1,0 \cdot 10^7$	$1,2 \cdot 10^8$
$^{115}\text{In}(n, \gamma) \text{ } ^{116}\text{In}$		13 sec	3,3 MeV β^- , 100%		$1,3 \cdot 10^{10}$
$^{197}\text{Au}(n, \gamma) \text{ } ^{198}\text{Au}$	4,9	2,7 d	0,96 MeV β^- , 99%	$1,47 \cdot 10^5$	$8,5 \cdot 10^5$
			0,41 MeV γ , 100%	$1,47 \cdot 10^5$	$8,5 \cdot 10^5$
$^{107}\text{Ag}(n, \gamma) \text{ } ^{108}\text{Ag}$	16,5	2,3 min	1,8 MeV β^- , 97%	$1,1 \cdot 10^7$	$6,0 \cdot 10^8$
$^{109}\text{Ag}(n, \gamma) \text{ } ^{110}\text{Ag}^m$		253 d	0,1 MeV β^- , 100%		$2,6 \cdot 10^2$
			0,66 MeV γ , 100%		$2,6 \cdot 10^2$
$^{63}\text{Cu}(n, \gamma) \text{ } ^{64}\text{Cu}$	590	12,8 h	0,66 MeV β^- , 19%	$8,1 \cdot 10^2$	$8,1 \cdot 10^1$
$^{65}\text{Cu}(n, \gamma) \text{ } ^{66}\text{Cu}$	240	5,2 min	>1,5 MeV β^- , 99%	$1,5 \cdot 10^3$	$1,1 \cdot 10^7$
			1,0 MeV γ , 9%	$1,4 \cdot 10^4$	$1,0 \cdot 10^7$
			>0,65 MeV β^- , 100%	$1,0 \cdot 10^5$	$1,0 \cdot 10^7$

Tab. 4: Eigenschaften verschiedener Sonden zum Nachweis von Spaltneutronen. Der Energiedosis 1 rad entspricht die Fluenz $2,78 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$ Nach [2]

Kernreaktion	Schwellwertenergie MeV	Halbwertszeit	Emission pro Zerfall	Verhältnis der induzierten spezifischen Aktivität zur Energiedosis $\text{min}^{-1} \text{g}^{-1} \text{rad}$
$^{31}\text{P}(n, p) \text{ } ^{31}\text{Si}$	2,7	2,6 h	1,5 MeV β^- , 100%	$7,15 \cdot 10^2$
$^{32}\text{S}(n, p) \text{ } ^{32}\text{P}$	2,8	14,2 d	1,7 MeV β^- , 100%	10,9
$^{24}\text{Mg}(n, p) \text{ } ^{24}\text{Na}$	7,2	15 h	1,4 MeV γ , 100%	5,44
			2,8 MeV γ , 100%	
$^{27}\text{Al}(n, \alpha) \text{ } ^{24}\text{Na}$	7,3	15 h	1,4 MeV γ , 100%	2,84
$^{27}\text{Al}(n, p) \text{ } ^{27}\text{Mg}$	4,7	9,5 min	2,8 MeV γ , 100%	
			1,0 MeV γ , 30%	
$^{58}\text{Ni}(n, p) \text{ } ^{58}\text{Co}$	2,8	71 d	0,84 MeV γ , 70%	$1,44 \cdot 10^1$
$^{115}\text{In}(n, n') \text{ } ^{115}\text{In}^m$	1,2	4,5 h	0,8 MeV γ , 99,5%	1,37
			0,34 MeV γ , 50%	$3,09 \cdot 10^2$

Als Bestrahlungsindikator für schnelle Neutronen oberhalb 2,5 MeV werden die Reaktionen $^{32}\text{S}(n, p) \text{ } ^{32}\text{P}$ und $^{31}\text{P}(n, p) \text{ } ^{31}\text{Si}$ benutzt. Eine Verbesserung der Nachweisempfindlichkeit erhält man mit großflächigen Sonden kleiner Massenbelegung, wobei die 1,71- bzw. 1,48-MeV- β -Strahlung mit einem Großflächenproportionalzähler gemessen wird. Für Phosphor ist die untere Nachweisempfindlichkeit etwa 10 mrad, bezogen auf Spaltneutronen und eine Sondenfläche von etwa 150 cm^2 [10]. Kleine Schwefeldetektoren werden zur Verbesserung der Empfindlichkeit in Aluminium-Schalen ausgebrannt oder chemisch aufgearbeitet [5, 11], so daß nur die β -Aktivität des P-32-Rückstandes ohne Selbstabsorption ausgemessen wird. Zur Dosisbestimmung muß hier ebenso das Neutronenspektrum zugrunde gelegt werden.

Werden keine Personendosimeter getragen, dann kann die Messung von Na24 des Gesamtkörpers oder einer Blutprobe zur Dosisbestimmung herangezogen werden (s. u.).

3.2.2 Personendosimeter

Spezielle Unfalldosimeter¹ (Tab. 5) enthalten eine Kombination verschiedener Aktivierungssonden, mit denen der Aktivierungsanteil thermischer, mittelschneller und schneller Neutronen getrennt werden kann. Die Neutronenfluenz thermischer und mittelschneller Neutronen erhält man mit zwei Goldfolien, von denen die eine mit 0,6 bis 1 mm Cd abgedeckt ist, wodurch thermische Neutronen unter 0,4 eV vom Nachweis ausgeschlossen werden. Eine Kadmiumdifferenz kann auch mit Co-Folien bestimmt werden (Co 60 hat den Vorteil einer großen Halbwertszeit von 5,23a und einer einfachen γ -Messung und Kalibrierung) [16, 17]. Wird eine Kombination von zwei Goldfolien mit dazwischenliegender Cd-Folie benutzt [4], dann kann man zwischen direkt einfallenden und am Körper rückgestreuten thermischen Neutronen unterscheiden. Bei einer beiderseitigen Ausmessung jeder Folie wird eine unterschiedliche Absorption gegenüber thermischen Neutronen und eine unterschiedliche β -Selbstabsorption ausgenutzt. Das Harwell-Dosimeter [2] enthält zusätzlich eine Schwefelscheibe und eine Indium-Folie innerhalb einer Kunststoffkapsel in Knopfform.

Die Bestimmung der Fluenz mittelschneller Neutronen erfolgt bei der Cd-Differenzmethode unter Zugrundelegung eines $1/E$ -Spektrums. Ein Abweichen vom $1/E$ -Spektrum kann durch zusätzliche Sonden, z. B. Kupfer, berücksichtigt werden, dessen Resonanzstellen [15] bei 0,6 bis 10 keV liegen (Hanford-Filmplakette [13, 14], β -Messung von Cu 64 in einem 2π -Zähler oder Messung der Vernichtungsstrahlung mit Szintillationszählern). Schnelle Neutronen oberhalb 1 MeV können über eine inelastische Streuung mit Indium nachgewiesen werden.

3.2.3 Kombination von Personen- und Ortsdosimetern

An Reaktoren oder an chemischen Aufbereitungsanlagen von Brennelementen werden spezielle Ortsdosimeter aufgestellt, um ein Neutronenspektrum (insbesondere für den Energiebereich intermediärer Neutronen) durch zusätzliche Schwellwertdetektoren, aber auch ohne störende Einflüsse von Körperabsorption und Strahleneinfallrichtung, so genau wie möglich zu bestimmen [2, 14, 36, 37]. Ein so erhaltenes Spektrum wird dann für einen ganzen Ortsbereich (etwa vor der Abschirmung oder nur hinter der Abschirmung) als gültig angesehen. Wie wichtig genaue Ortsdosismessungen sind, zeigt die Änderung des Neutronenspektrums und des Neutronen- γ -Dosisverhältnisses mit größer werdendem Abstand vom Zentrum (Abb 1 und Tab. 7).

Die zusätzlich ermittelten Ortsdosisanteile von thermischen, intermediären und schnellen Neutronen können danach zu einer im gleichen Ortsbereich festgestellten Personendosis in Beziehung gesetzt werden. Im einfachsten Fall sind dies normale Personendosimeter, die aber auch durch zusätzliche Detektoren (z. B. Nickel-Aluminium) ergänzt werden. In Oak Ridge wurde ein spezielles Ortsdosimeter entwickelt, welches Spaltfolien von Pu 239, Np 237 und U 238 in einer Cd-B-Kapsel enthält [12, 5]. Damit erhält man Neutronenfluenzwerte oberhalb einer Schwellwertenergie von 1 keV, 0,75 MeV und 1,5 MeV. Gold-, Gold-Cadmium- und Schwefel-Detektoren ergeben zusätzlich einen Aktivierungsanteil

¹ Über neuere Unfalldosimetersysteme, die ähnliche Kombinationen von Aktivierungsfolien enthalten, wurde in der Zwischenzeit beim »Symposium on Dosimetry of Irradiations from External Sources«, Paris, November 1964 (veranstaltet von der französischen Sektion der Health Physics Society), insbesondere aber beim »IAEA-Symposium on Personnel Dosimetry for Accidental High-Level Exposure to external and Internal Radiation«, Wien, März 1965, vorgebracht.

Tab. 5: Eigenschaften verschiedener Unfalldosimetersysteme¹ Nach [2—5, 12—14]

	Hanford	Harwell	Oak Ridge
γ -Strahlung	Glasdosimeter	Filmdosimeter	Glasdosimeter chem. Dosimeter
thermische Neutronen	¹¹⁵ In— ¹¹⁵ In (Cd)	¹⁹⁸ Au(Cd) ¹⁹⁸ Au	¹⁹⁸ Au— ¹⁹⁸ Au(Cd)
mittelschnelle Neutronen	¹¹⁵ In(Cd), ⁶³ Cu		¹⁹⁸ Au(Cd)
schnelle Neutronen	³² S, ¹¹⁵ In(Cd)	³² S	³² S
Bestrahlungs-Indikator	¹¹⁵ In	¹¹⁵ In	¹¹⁵ In
Befestigung	in Filmplakette	an Gürtel oder Filmplakette ansteckbar	in Filmplakette
Bestimmung des Spektrums	siehe oben	siehe oben ²³⁵ Np, ²⁷ Al	siehe oben Spaltfolienkombination ²³⁹ Pu, ²³⁷ Np, ²³⁸ U, ³² S
Dosisbestimmung	Moderator-detektor: In Au-Folien in Paraffinzylinder	²³ Na-Phantom mit 6 Dosimetern (siehe oben)	

Tab. 6: Empfindlichkeit von Schwellwertdetektoren. Nach [5]

	Nulleffekt		Empfindlichkeit	
	Detektor Imp min	Folie Imp min	Imp min ¹ g ⁻¹ 10 ¹⁰ cm ²	Imp min ¹ g ⁻¹ rad
Au	50	0	33 700	—
Pu	280	970	5 260	233
Np	280	0	4 470	127
U	280	80	1 440	22
S	22	0	750	5,4

Tab. 7: Relative FC-Energiedosis-Anteile bei verschiedenen Neutronenspektren. Die Anteile wurden experimentell mit Schwellwertdetektoren bestimmt [18, 1, 19]

Detektor	Neutronenenergie	Relativer FC-Energiedosis-Anteil in %					
		Spalt-spektrum	HPRR	SPR in 1 m	SPR in 3 m	Vinča	Hanford
Au	1 keV	0	—	—	—	0,3	0,5
Pu-Np	1 keV	10,7	17	43	53	41,3	24,9
Np-U	0,75 . 1,5 MeV	20,9	32	19	21	21	39,8
U-S	1,5 . 2,5 MeV	26,4	17	22	16	18,2	14,9
S	2,5 MeV	42	34	16	10	19,2	19,9

durch thermische Neutronen bzw. durch Neutronen oberhalb 2,5 MeV. Bei Spaltfolien wird die γ -Aktivität der entstehenden Spaltprodukte gemessen. Tab. 6 zeigt die Empfindlichkeit von Schwellwertdetektoren, Tab. 7 die Energiedosisanteile verschiedener Neutronenspektren, die mit Schwellwertdetektoren bestimmt worden sind.

3.2.4 Ortsdosimeter

In Arbeitsräumen, in denen Personen keine Unfalldosimeter tragen, werden in manchen Fällen phantomartige Ortsdosimeter aufgestellt. Dies sind z. B. mit Natriumoleat-Lösung

gefüllte zylindrische Kunststoffflaschen (25 cm Durchmesser, 25 cm hoch), an denen außen 6 Personendosimeter befestigt sind [2]. Eine Ortsdosisbestimmung ist damit über die Aktivierung von Sonden sowie auch über eine mittlere Na-23-Phantom-Aktivierung möglich.

Als festinstallierte Kritikalitätsdosimeter werden Moderator-typdetektoren mit Indium-, Gold- oder Kobaltfolien [20, 21, 17] oder mit silberaktivierten Metaphosphatgläsern [22] in der Mitte eines Paraffin-Zylinders oder einer Polyäthylenkugel (15 bis 20 cm Durchmesser, 20 cm Höhe) verwendet. Solche Anordnungen sind oberhalb 0,1 MeV proportional zur Energiedosis, überbewerten aber den Energiebereich intermedärer Neutronen. Eine Gesamtdosismessung ist bei Kalibrierung mit Spaltneutronen unter der Voraussetzung einer nur geringen Veränderung der langsamen Neutronen-Komponente des Unfallspektrums innerhalb $\pm 15\%$ möglich. Der Dosisbereich liegt zwischen ca. 1 und 10^6 rad. In Hanford wird mit einer Kombination von Aktivierungsfolien zusätzlich das Neutronenspektrum bestimmt.

4. Neutronendosisbestimmung mittels einer Körperaktivierung

4.1 Na-23-Aktivierung

Neutronen vermögen auch körpereigene Substanzen zu aktivieren. Dies gilt insbesondere für das im Körper relativ gleichmäßig verteilte Na 23 (Tab. 8), welches durch Einfang von im Körper moderierten Neutronen als Na 24 im Gesamtkörper, im Blut oder im Urin nachgewiesen werden kann. Die Einfangwahrscheinlichkeit von Neutronen im Körper ist von der Energie der Neutronen abhängig. Sie wurde zum Teil experimentell mit einem Phantom bestimmt und liegt zwischen 20 und 50% (Abb. 5). Die gleiche Energieabhängigkeit kann auch der Aktivierungswahrscheinlichkeit von Na 23 zugrundegelegt werden. Der Einfluß der Neutronenenergieverteilung auf eine Dosisbestimmung ist in Tab. 2 für verschiedene Unfallspektren wiedergegeben.

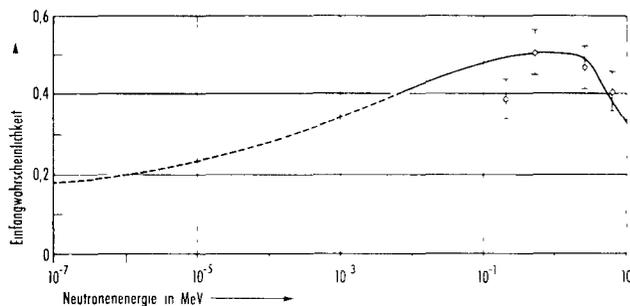


Abb 5. Die Neutroneneinfangwahrscheinlichkeit in einem Körperphantom (Zylinder mit 30 cm Durchmesser) in Abhängigkeit von der Neutronenenergie Berechnung [25] mit experimentellen Meßwerten [26]. Der gestrichelte Kurventeil ist extrapoliert.

Die Na-24-Aktivität wird meist über die 2,76-MeV- γ -Linie gemessen, wobei eine Ausmessung von Blutproben (ca. 50 cm³) gegenüber einer Ganzkörpermessung dann vorzuziehen ist, wenn eine größere Personenzahl ausgemessen oder wenn mit einer Kontamination der Körperoberfläche gerechnet werden muß. Eine durch die Bestrahlung im Körper ursprünglich vorhandene Tiefendosisverteilung [23] wird durch den Natriumsatz innerhalb des Körpers bzw. Blutes wieder nivelliert. Die Körperaktivität ergibt daher (ohne den Einfluß einer Körperabschirmung) eine über den Gesamtkörper gemittelte Dosis. Orientierungsfehler können jedoch bis zu 36% betragen [2, 24]. Für eine genaue Energiedosisbestimmung ist es daher vorteilhaft, zusätzliche Aussagen über die Orientierung des Körpers zur Neutronenquelle zu erhalten.

Tab. 8: Na-23-Aktivierung durch 2,5-MeV-Neutronen im menschlichen Körper². Verhältnis der Energiedosis an der Körperoberfläche zur Fluenz $4,3 \cdot 10^9$ rad/cm². Nach [2].

	²³ Na-Konzentration mg cm ⁻³	Verhältnis der induzierten Aktivitätskonzentration zur Energiedosis min ⁻¹ cm ⁻³ rad
Mittlere Gewebezusammensetzung des Körpers	1,5	3,3
Blut	1,9	4,2
Blutserum	3,2	6,8

Bisher liegen nur Kalibrierungen an Tieren und Phantomen vor [5, 18, 23—27], so daß die Einflüsse von Körpergröße, von Körpergewicht und vom Na-24-Umsatz im Körper noch nicht vollständig bekannt sind².

4.2 S-35-Aktivierung

Im menschlichen Haar vorhandener Schwefel wird von schnellen Neutronen aktiviert; das entstehende P 32 kann über eine β -Messung nachgewiesen werden. Besonders vorteilhaft ist hier eine relativ leichte Probeentnahme an verschiedenen Stellen des Körpers und damit die Bestimmung einer Strahleneinfallrichtung; nachteilig wirkt sich eine eventuelle Kontamination der Körperoberfläche aus. Die untere Nachweisempfindlichkeit für Neutronen oberhalb 2,5 MeV liegt bei ca. 5 rad [28, 29].

5. Meßmethodische Entwicklungstendenzen der Neutronendosimetrie

In der letzten Zeit wurden neue Meßmethoden entwickelt, die zum Nachweis von Neutronen spezielle Halbleiterdetektoren oder eine Kombination von Sondensubstanzen mit Festkörperdetektoren benutzen (s. auch Zusammenfassung [40]).

Silicium-Dioden zeigen bei Bestrahlung mit schnellen Neutronen oberhalb 0,2 MeV eine Änderung des Vorwärtswiderstandes [21]. Die Änderung der Festkörpereigenschaften wird hierbei durch die Herauslösung von Silicium-Rückstoßkernen aus Silicium-PN-Schichten erreicht. Die untere Nachweisempfindlichkeit für eine Dosisbestimmung liegt bei ca. 1 rad.

Thermolumineszenz- und Radiophotolumineszenz-Dosimeter sind durch Anteile an Ag, Li und B neutronenempfindlich [33, 22, 38]. Die Nachweisempfindlichkeit gegenüber Neutronen kann durch zusätzliche Aktivierungsfolien verstärkt werden. Nachteilig ist die relativ große γ -Empfindlichkeit der Dosimeter.

Eine interessante Anwendung bieten Spaltfolien in Kontakt mit Kunststofffolien. Durch Neutroneneinfang ausgelöste Spaltfragmente erzeugen in der Kunststoffolie mikroskopisch sichtbare Beschädigungen (Löcher), deren Zahl pro Flächeneinheit ein Maß für die Neutronenfluenz ist [34] (Auswertung wie Kernspurfilm).

6. Herabsetzung des Körpereinflusses

Die Genauigkeit einer Personendosisbestimmung wird durch eine Vielzahl von Aktivierungssubstanzen und zusätzlichen Ortsdosimetern nicht verbessert, solange Einflüsse von Körperabschirmung und Körperückstreuung auf die Ermittlung

² Für den mittleren Na-Gehalt des Körpers wurde hierbei ein von der ICRP empfohlener Wert von 105 g zugrundegelegt. Im Gegensatz dazu ergaben neuere Messungen [42] an Personen mit 14-MeV-Neutronen einen mittleren Na-Gehalt von (75 ± 5) g.

Tab. 9: Der auf der Vorderseite eines Körperphantoms gemessene Dosisanteil der Freiluftdosis bei Bestrahlung der Phantommückseite für verschiedene kritische Anordnungen. Gemessen mit Au- bzw. S-Sonden und mit Filmdosimetern. Nach [18, 26]

Nachweis von	Relativer Dosisanteil in %		
	Godiva II	kritische Anordnung	Vinča
thermischen Neutronen	50	43	38
schnellen Neutronen	10,6	14	18
γ -Strahlung	—	56	—

des Spektrums und der Teildosen nicht berücksichtigt werden. Schnelle Neutronen können bis zu 90%, thermische Neutronen bis zu 60% durch den Körper absorbiert werden (Tab. 9). Es ist daher eine Grundforderung der Katastrophendosimetrie, diesen Körpereinfluß durch Tragen zahlreicher, aber gleicher Dosimeter bzw. Aktivierungs sonden an Gürteln oder Halsketten weitgehend auszuschließen [2, 30—32]. Denkbar sind ferner in der Arbeitskleidung eingenähte Kunststoffgürtel oder die Verwendung von synthetischen Fasern mit Aktivierungszusätzen. Hierbei ist es ausreichend, sich neben γ -Dosimetern auf Detektoren für schnelle und thermische Neutronen zu beschränken. Damit erhält man (zusätzlich zum Meßwert der Körperaktivierung bzw. der Aktivierungs sonden) eine Information über die mittlere Orientierung der betreffenden Person zur Strahlungsquelle. Es gestattet andererseits Rückschlüsse auf eine im Körper tatsächlich vorhandene Energiedosisverteilung, welche sich auf das vorhandene Spektrum und auf die betreffende Person bezieht.

7. Zusammenstellung der Ergebnisse

Die Grundforderungen, die man heute an eine Katastrophendosimetrie stellt, nämlich

1. schnelle Auswahl von bestrahlten und nicht bestrahlten Personen durch einfache Bestrahlungsindikatoren,
2. Information über eine durch Körperstellung und Körperbewegung bedingte mittlere Neutroneneinfallrichtung während des Unfalls,
3. notwendige Kenntnis der Neutronenenergieverteilung (zumindest des mittelschnellen Energiebereichs) zur Korrektur der gemessenen Dosisanteile

zeigen, mit welchem Aufwand an Dosimeterarten, meßtechnischen Verfahren und zusätzlichen Informationen eine einfache Energiedosisbestimmung von Neutronen belastet ist. Das Fehlen eines Einfachdosimeters, d. h. eines universellen Verfahrens zur Personendosisbestimmung, erfordert eine gewisse Entscheidung für ein spezielles Dosimeterverfahren.

Die experimentelle Bestimmung einer Neutronendosis aus der im Körper bzw. im Blut vorhandenen Konzentration an Na 24/Na 23 ist für die Unfalldosimetrie von zentraler Bedeutung. Hierbei wird jedoch vorausgesetzt, daß der Einfluß der Körperorientierung, der Körpergröße und auch der Rückstreuanteil der thermischen Komponente durch zusätzliche Angaben korrigiert werden können. Davon ausgehend, können neben γ -Dosimetern einfache Neutronendetektoren getragen werden, wenn sie nur eine zusätzliche Körperorientierung angeben. Ein solches Personenunfalldosimeter ist z. B. ein Dosimetergürtel mit je 4 bis 6 Neutronendetektoren (Gold, Schwefel) und γ -Dosimetern, welche die Strahleneinfallrichtung auf ca. 30° genau angeben können. Eine Neutronendosis ist damit aus der Körperaktivität bei be-

kanntem Spektrum mit einer Genauigkeit von $\pm 20\%$, eine γ -Dosis bei Verwendung von Glasdosimetern [35, 39] heute ebenso innerhalb $\pm 20\%$ bestimmbar.

In Ergänzung dazu sollen Ortsdosimeter genauere Angaben zulassen über das Neutronenspektrum (Indium-, Kupfer-, Schwefel- oder Spaltdetektoren), über das Neutronen- und γ -Dosisverhältnis sowie über charakteristische Größen wie Na-24-Aktivität und Körperabsorption bei definierter Orientierung (Flaschenphantom mit Dosimetergürtel).

Es hat sich gezeigt, daß die zur Zeit mit einem Einfachdosimeter routinemäßig durchgeführte γ -Personendosimetrie sowohl durch die gewählte Dosimeterart als auch durch Vernachlässigung des Körpereinflusses die Grundforderungen einer Katastrophendosimetrie nicht erfüllt. Da die routinemäßige Personendosismessung nur eine Kontrolle vorgeschriebener Strahlenschutzmaßnahmen darstellt und darüber hinaus statistischen Zwecken dient, verzichtet man aus wirtschaftlichen Gründen auf eine genaue Bestimmung einer Personendosis. Eine Unfalldosimetrie stellt demgegenüber eine unmittelbare Strahlenschutzmaßnahme dar; sie muß das bestimmte Ziel verfolgen, eine Personendosis auf etwa $\pm 20\%$ genau zu bestimmen, um beim Auftreten hoher Dosen innerhalb kürzester Zeit Gegenmaßnahmen einleiten zu können.

(Eingegangen am 3. 12. 1964)

Literatur

- [1] Mobley, T. S., R. E. Engel und W. R. Godden: Proc of IAEA Symposium, Upton 1964, S. 103
- [2] Dennis, J. A.: Proc of ENEA Symposium, Madrid 1963
- [3] Dennis, J. A.: Proc of IAEA Symposium, Upton 1964, S. 107
- [4] Adams, N., und J. A. Dennis: Proc. of IAEA Symposium, Harwell 1963
- [5] Hurst, G. S., und R. H. Ritchie: ORNL-2748, Part A (1959)
- [6] Hagen, U., und H. Langendorff: Atomkernenergie 5, 173 (1960)
- [7] Becker, K.: Direct Information 5 64
- [8] National Bureau of Standards Handbook 63 Washington, D. C. U. S. Government Printing Office 1957
- [9] Kiefer, H., und R. Maushart: Strahlenschutzmeßtechnik Karlsruhe G. Braun 1964
- [10] Tschirf, E.: Direct Information 14/64
- [11] Aten, A. W. H., jr.: Proc. of ENEA Symposium, Madrid 1963
- [12] Gupton, E. D., D. M. Davis, und J. C. Hart: Health Physics 5, 57 (1961)
- [13] Kocher, L. F., P. E. Bramson, und C. M. Unruh: HW-76944 (1963)
- [14] Bramson, P. E.: HW-SA-2625 (1962)
- [15] Anderson, L. L.: Health Physics 10, 315 (1964)
- [16] Taylor, N. K., und J. K. Linacre: AERE-R-4111
- [17] Smith, A. R.: Health Physics 7, 40 (1961)
- [18] Hurst, G. S., R. H. Ritchie, und F. W. Sanders: Health Physics 5, 179 (1961)
- [19] Hanford Report: Health Physics 9, 757 (1963)
- [20] Stephens, L. D., und H. Aceto, jr.: UCRL-10361 (1962)
- [21] Gammertsfelder, C. C., P. E. Bramson, G. W. R. Endres, und R. H. Wilson: Proc of IAEA Symposium, Harwell 1963
- [22] Piesch, E.: Atompraxis 10, 6 (1964)
- [23] Hightower, D., und H. M. Swartz: Proc of IAEA Symposium, Upton 1964, S. 141
- [24] Sanders, F. W., und J. A. Auxier: Health Physics 8, 371 (1962)
- [25] Hurst, G. S., R. H. Ritchie, und L. C. Emerson: Health Physics 2, 121 (1959)
- [26] Smith, J. W.: Phys. Med. Biol. 7, 341 (1962)
- [27] Thomas, R. E., und D. G. Brown: Health Physics 6, 19 (1961)
- [28] Peterson, D. F., V. E. Michell, und W. H. Langham: Health Phys. 6, 1 (1961)
- [29] Peterson, D. F.: Health Phys 9, 231 (1963)
- [30] Auxier, J. A., F. W. Sanders, und P. N. Hensley: Health Physics 5, 226 (1961)
- [31] Redmond, J. W.: Y-1405 (1962)
- [32] Piesch, E.: Atompraxis 9, 179 (1963)
- [33] Schulman, J. H., F. H. Attix, E. J. West, und R. J. Ginther: Proc. of ENEA-Symposium, Madrid 1963
- [34] Unruh, C. M.: 9th Annual Meeting of Health Physics Society, Cincinnati 1964, paper P/78
- [35] Piesch, E.: Direct Information 17/64
- [36] Bricka, M., G. Soudain, und R. Morawek: Int. Symposium der franz. Sektion der Health Physics Society, Paris 1964
- [37] Candes, P., und J. M. Lavie: Int. Symposium der franz. Sektion der Health Physics Society, Paris 1964
- [38] Becker, K.: Int. Symposium der franz. Sektion der Health Physics Society, Paris 1964
- [39] Maushart, R., und E. Piesch: Int. Symposium der franz. Sektion der Health Physics Society, Paris 1964
- [40] Becker, K.: Kerntechnik 7, 274 (1965)
- [41] Piesch, E.: Direct Information 7/65
- [42] Smith, J. W., und J. A. Dennis: IAEA Symposium Wien 1965