

Interner Bericht

DESY D3-64

März 1988

Festkörper-Spuredetektoren zur Messung  
der Neutronendosis bei HERA

B. Racky

Eigentum der Property of	<b>DESY</b>	Bibliothek library
Zugang: Accessions:	0 3. JUNI 1988	
Leihfrist: Loan period:	<b>7</b>	Tage days

**DESY behält sich alle Rechte für den Fall der Schutzrechtserteilung und für die wirtschaftliche Verwertung der in diesem Bericht enthaltenen Informationen vor.**

**DESY reserves all rights for commercial use of information included in this report, especially in case of filing application for or grant of patents.**

**“Die Verantwortung für den Inhalt dieses  
Internen Berichtes liegt ausschließlich beim Verfasser“**

Interner Bericht

DESY D3-64

März 1988

Festkörper-Spurendetektoren zur Messung  
der Neutronendosis bei HERA

B. Racky

Summary:

For the dosimetry of high-energy neutrons in the surrounding of the HERA proton accelerator a solid state nuclear track detector was tested, using an Am-Be neutron-source. Fission products of the threshold-reactions ( $\approx 1.3$  MeV) of Th-232 and U-238 were detected in 8  $\mu\text{m}$  thick polycarbonate foil „MAKROFOL“ and counted with a spark-counter after etching the foils in 6n NaOH at 60° C for 2 hours.

The results of sensitivity- and background-measurements show, that a dose of 0.2 mSv/month can be detected, using a Th-232 radiator (area 7.07  $\text{cm}^2$ ) within 3 months exposition time. Calculations give the same value for Bi-209-radiators with a threshold-energy of 50 MeV.

Inhalt:

1. Einleitung
2. Festkörperspurdetektoren als Neutronendosimeter
3. Spurenzahlen aus Spaltfragment-Radiatoren
4. Spurennachweis mit dem Funkenzähler
5. Untergrund und Störeffekte
  - 5.1 Spuren, die nicht von Spaltprodukten stammen
  - 5.2 Spontanspaltung
  - 5.3 Spaltung durch thermische Neutronen
  - 5.4 Spaltung durch hochenergetische Photonen
  - 5.5 Übersicht
6. Meßergebnisse
  - 6.1 Meßempfindlichkeit
  - 6.2 Untergrund
  - 6.3 Kritische Spurendichte
7. Kleinste und größte nachweisbare Dosis
8. Zusammenfassung

## 1. Einleitung

In der Umgebung von Hochenergie-Protonenbeschleunigern entstehen in hadronischen Kaskaden u.a. auch schnelle Neutronen. Es wurden Spektren gemessen [1, 2, 3] nach denen der größte Beitrag im Energiebereich von 0.1 - 100 MeV liegt.

Bisher werden zur Überwachung der Neutronen-Ortsdosis bei den DESY-Beschleunigern hauptsächlich Li-6/Li-7-Thermolumineszenzdosimeter mit Moderator eingesetzt, die (neben Gammastrahlung) für Neutronen nur bis zu 1 MeV empfindlich sind. Diese sind gegen rem-counter kalibriert, die Neutronen bis zu 15 MeV messen können. Einige rem-counter sind ebenfalls zur ständigen Überwachung der Ortsdosis eingesetzt.

Bei HERA bietet sich zur Ergänzung der TLD-Paare eine Aktivierungs-sonde mit einer Schwellenenergie um 1 MeV an. Die Reaktionsprodukte können unmittelbar beim Entstehen in Festkörperspurdetektoren registriert werden, so daß eine integrierende, totzeitfreie Messung möglich ist. Als kleinste nachweisbare Dosis sollte 0,2 mSv pro Monat angestrebt werden.

Im Folgenden werden die Auswahl eines geeigneten Festkörperspurdosimeters für HERA erörtert und die Ergebnisse von entsprechenden Laborversuchen vorgestellt.

## 2. Festkörperspurdetektoren als Neutronendosimeter

Geladene Teilchen können beim Auftreffen auf elektrisch nicht leitendes Material bleibende latente Spuren hinterlassen, die durch chemische Ätzung verstärkt und unter dem Mikroskop sichtbar gemacht werden können. Neutronen erzeugen keine direkten Spuren, sondern müssen über (n, $\alpha$ )-, (n,p) - bzw. (n,f)-Reaktionen oder über Rückstoßkerne bzw. -protonen aus elastischen Streuungen nachgewiesen werden. Als Detektormaterial kommen anorganische Kristalle, Gläser und Folien aus organischen Polymeren in Frage. Die Spurerzeugung hängt von Ladung, Energie und Masse der einfallenden Teilchen sowie von charakteristischen Eigenschaften des Detektormaterials ab. Die Sichtbarmachung von Spuren unterschiedlicher

Herkunft kann teilweise durch Wahl der Ätzbedingungen beeinflusst werden. Die Grundlagen und Anwendungsmöglichkeiten der SSNTD (Solid State Nuclear Track Detectors) sind ausführlich z.B. in [4 - 7] beschrieben.

Spaltprodukte sind wegen ihrer großen Masse und Ladung besonders gut nachzuweisen. Dazu wird das Detektormaterial in Kontakt mit einem spaltbaren Material, dem Radiator, gebracht. Üblich ist eine „2π“-Geometrie mit einer Berührungsfläche von einigen cm<sup>2</sup>. Die einfallenden Neutronen erzeugen pro Spaltung zwei Bruchstücke, die in entgegengesetzten Richtungen auseinanderfliegen. Eines davon gelangt ins Detektormaterial und kann sichtbar gemacht werden, wenn der Einfallswinkel größer ist als ein kritischer Winkel, der von Material und Ätzbedingungen abhängt.

Für den Nachweis von Neutronen mit einer Energie >1 MeV eignen sich als Radiatormaterial Th-232 und U-238, weil deren Schwellenenergie für die (n,f)-Reaktionen bei ca. 1,3 MeV ist. Als Zusatzinformation für die Abgrenzung vom sehr hochenergetischen Bereich kann Bi-209 mit einer Schwellenenergie von ≈50 MeV eingesetzt werden. Die Wirkungsquerschnitte als Funktion der Neutronenenergie sind in Abb. 1 dargestellt.

Die entstehenden Spaltprodukte werden am einfachsten mit Plastikdetektoren nachgewiesen. Hier hat MAKROFOL, eine Polycarbonatfolie der Firma Bayer, besonders gute Eigenschaften. Der kritische Einfallswinkel ist ca. 3°, so daß das Nachweisvermögen sehr gut ist; nahezu 100% für den rechtwinkligen, ca. 70% für den isotropen Einfall von Spaltprodukten [5]. Die Spuren bleiben ohne fading über einen längeren Zeitraum erhalten.

Makrofol ist auch in dünnen Folienstärken -bis zu 8 µm- erhältlich, so daß ein Spark-counter nach dem Prinzip von Cross und Tommasino [8] eingesetzt werden kann. Dies ermöglicht auch den Nachweis sehr kleiner Spurendichten und eine automatische Spurenzählung.

### 3. Spurenzahlen aus Spaltfragmentradiatoren

Bei einseitiger Berührung eines Spaltradiators mit einem Festkörperspurdetektor kann die maximal meßbare Spurenzahl pro Fläche und Äquivalentdosis ( $T_{HF}$ ) berechnet werden nach:

$$[1] \quad T_{HF} = C_t \cdot \frac{1}{h_\phi} \cdot \sigma_F \quad \text{in} \quad \frac{tr}{\text{cm}^2 \cdot \text{mSv}}$$

(tr  $\hat{=}$  Spurenzahl)

Dabei ist:

$h_\phi$ : Konversionsfaktor für die Umrechnung der Fluenz in Dosis (nach ICRP-21 s. Abb. 2) in  $\text{cm}^2 \cdot \text{mSv}$

$\sigma_F$ : Spaltquerschnitt des Radiators in barn

$C_t$ : für dicke Radiatoren eine Konstante.\*  
Sie wurde ermittelt [9,10] zu:

$$C_t = 1,16 \cdot 10^{-5} \frac{tr}{n \cdot \text{barn}}$$

\* Dazu muß die Dicke des Radiators  $>10 \text{ mg/cm}^2$  sein [5]; also für unsere Radiatoren:

	Dichte	$d_{\text{min}}$
Thorium :	11,72 g/cm <sup>3</sup>	8,5 $\mu\text{m}$
Uran :	18,95 g/cm <sup>3</sup>	5,3 $\mu\text{m}$
Wismuth :	9,75 g/cm <sup>3</sup>	10,3 $\mu\text{m}$

Da  $h_\phi$  über einen großen Energiebereich (1-100 MeV) praktisch konstant ist, bestimmen im wesentlichen Größe und Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnittes die Spurenausbeute pro Dosiseneinheit. Für die drei interessierenden Radiatoren ist das  $T_{HF}(E)$  nach Gl. [1] in Abb. 3 aufgezeichnet. Es ergibt sich nur für U-238 annähernd eine Konstante, ansonsten wird zur Auswertung eine grobe Information über das Neutronenspektrum benötigt; beispielsweise ist das  $T_{HF}$  für Th-232 zwischen 20 und 100 MeV ca. 5 mal höher als für 1-6 MeV.

Bei Kenntnis des Neutronenspektrums wird die Spurenzahl besser berechnet mit:

$$[2] \quad T_{HF} = C_t \cdot \sum_{i=1}^n \frac{\sigma_{Fi}(E)}{h_{\phi}(E)} \cdot \frac{\phi_i(E)}{\phi} \cdot \Delta E_i;$$

dabei ist  $\frac{\phi_i(E)}{\phi}$  E ein dimensionsloser spektraler Wichtungsfaktor mit

$\phi_i(E)$ : Fluenz pro Energieintervall

$\phi$  : Gesamtfluenz

$\Delta E$  : Größe des Energieintervalls

Für Vorversuche und zum Kalibrieren haben wir eine Am-Be-Neutronenquelle verwendet. Ein Spektrum ist nach [11] in Abb. 4 dargestellt.

Da die häufigste Emission im Energiebereich 1-10 MeV ist, kann der Bi-Radiator ( $E_s=50$  MeV) damit nicht getestet werden.

Für Th-232 und U-238 wurde die Summe aus Gl. [2] mit Hilfe der Wirkungsquerschnittsfunktionen (Abb. 1), des ICRP-Dosisäquivalents (Abb. 2) und des Neutronenspektrums der Am-Be-Quelle (Abb. 4) intervallweise gebildet.

Daraus ergibt sich die maximale Spurenzahl zu:

$$\text{Th-232} : 4,60 \frac{t_r}{\text{cm}^2 \cdot \text{mSv}}$$

$$\text{U-238} : 16,6 \frac{t_r}{\text{cm}^2 \cdot \text{mSv}}$$

Dem würde entsprechen:

$$\text{Th-232} : 1 \frac{t_r}{\text{cm}^2} \hat{=} 220 \mu\text{Sv}$$

$$\text{U-238} : 1 \frac{t_r}{\text{cm}^2} \hat{=} 60 \mu\text{Sv}$$

### 3. Spurennachweis mit dem Funkenzähler

Die dünne Detektorfolie wird nach dem Bestrahlen, Ätzen, Spülen und Trocknen flächendeckend auf eine Messingelektrode gelegt, die von einer ringförmigen Gegenelektrode umgeben ist. (siehe Abb. 7). Dann werden Film und Ringelektrode mit einer aluminiumbedampften Plastikfolie (Mylarfolie) bedeckt, so daß die Al-Seite nach unten weist, und mit einem Deckel beschwert. Bei einer Spannung von einigen 100 V an den Elektroden bricht das elektrische Feld zwischen Al-Folie und innerer Elektrode an der schwächsten Stelle der Detektorfolie zusammen, also an einem der ganz oder teilweise durchgeätzten Spurenkanäle. Bei diesem Durchschlag wird mit einer entsprechenden Schaltung (s. Abb. 8) ein elektr. Impuls erzeugt, der verstärkt und gezählt werden kann. Das ist für jedes Loch nur einmal möglich, weil das Aluminium sofort verdampft und damit lokal der Gegenpol fehlt, so daß der nächste Durchschlag an einem anderen Ätzkanal stattfindet usw. Durch Wechseln der Al-Folie kann jeder Film mehrfach gezählt werden.

Resultate aus mehreren Zählungen sind besser reproduzierbar, wenn zunächst mit einer größeren Spannung (ca. 1 kV) „vorgefunkt“ wird (pre-sparking), um die Ätzkanäle zu reinigen und zu öffnen. Für die eigentliche Zählung ist eine niedrigere Spannung zu empfehlen, um einerseits Mehrfachdurchschläge zu vermeiden und andererseits die pro Durchschlag verdampfte Al-Fläche möglichst klein zu halten. Das ist besonders wichtig, wenn größere Spurendichten verarbeitet werden sollen, d.h., der Abstand zwischen den Spuren so klein ist, daß durch die Al-Verdampfung bei einem Durchschlag auch den Nachbarlöchern die Gegenelektrode genommen wird und sie daher nicht registriert werden können. Ein weiterer Effekt ist die Bildung von isolierten Al-Inseln, die von einem Pfad überlappender Verdampfungsstellen umgeben sind und sich so dem Nachweis entziehen. (Beispiel in Abb. 9).

Die Ausbeute der spark-counter-Zählung ist kleiner als die der Mikroskop-Zählung, weil bei Spuren unter flachem Einfallswinkel, die zwar noch gesehen werden können, kein Durchschlag stattfindet. Dennoch, und auch trotz Automatisierung bei optischen Auswertungsverfahren ist der spark-counter vorzuziehen, wenn nur wenige Spu-

ren gezählt werden sollen.

## 5. Untergrund und Störeffekte

### 5.1 Spuren, die nicht von Spaltprodukten stammen

Allein durch die Prozedur des Ätzens können in einem unbestrahlten Makrofol-Film Löcher stehen. Die Anzahl hängt ab von der Ätzdauer sowie von Alter und Lagerung der Folie [12]. Auch die  $\alpha$ -Strahlung von Th-232 und U-238 (Bi-209 ist nicht radioaktiv) könnte kleine Spuren erzeugen. Manche Kunststofffolien werden eigens für den  $\alpha$ -Nachweis eingesetzt [13]. Ferner ist zu untersuchen, inwieweit bei Neutronenbestrahlung von Makrofol ohne Radiator Spuren aus Rückstoßeffecten auftreten. Dieses Nachweisverfahren wird bei CR-39-Folien ausschließlich ausgenutzt, ist aber auch bei Polycarbonaten anwendbar [14].

Alle diese Effekte müssen experimentell untersucht werden, besonders daraufhin, ob sie durch Variation der Ätzprozedur minimiert werden können, ohne den Spaltproduktnachweis zu beeinträchtigen.

Solch eine Diskriminierung ist bei den folgenden Effecten grundsätzlich nicht möglich, weil dabei jeweils auch Spaltprodukte erzeugt werden.

### 5.2 Spontanspaltung

U-238 und Th-232 sind Isotope, die zu einem kleinen Anteil spontane Spaltungen machen (Bi-209 nicht). Bei einseitiger Berührung von Radiator und Detektor kann die daraus resultierende Spurenzahl berechnet werden mit [5]:

$$[3] \quad \frac{N_{SF}}{F} = \frac{\ln 2}{t_{1/2}} \cdot \frac{A}{m_A} \cdot \rho \cdot R \cdot t_{exp}$$

dabei ist:

$N_{SF}$  : Zahl der Spuren durch Spontanspaltung

$F$  : Berührungsfläche Detektor/Radiator

$t_{1/2}$ : Halbwertszeit der Spontanspaltung

- A : Avogadro-Konstante ( $6.02 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ )  
 $m_A$  : Atomgewicht  
h : Isotopenhäufigkeit  
 $\rho$  : Dichte  
R : Reichweite der Spaltfragmente im Radiator  
 $t_{\text{exp}}$  : Expositionszeit

Für die beiden Radiatoren ist:

	U-238	Th-232	
$t_{1/2}$	$\sim 6,5 \cdot 10^{15} \text{ a}$	$\geq 10^{21} \text{ a}$	[5]
$m_A$	238 g	232 g	
h	0,996 *	1,00	
$\rho$	$18,95 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$	$11,72 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$	
R	5,3 $\mu\text{m}$	9,1 $\mu\text{m}$	
$\frac{N_{\text{SF}}}{F}$	$0,2 \frac{\text{tr}}{\text{h} \cdot \text{cm}^2}$	$1,5 \cdot 10^{-7} \frac{\text{tr}}{\text{h} \cdot \text{cm}^2}$	

\* abgereichertes Uran

d.h., bei einem Monat Expositionszeit erhält man:

$$\text{U-238} : 144 \frac{\text{tr}}{\text{cm}^2}$$

$$\text{Th-232} : 1 \cdot 10^{-4} \frac{\text{tr}}{\text{cm}^2}$$

Obwohl die Rechnungen wegen der unzureichend bekannten Halbwertszeiten sehr fehlerbehaftet sind, läßt die unterschiedliche Größenordnung der Untergrundspuren eine deutliche Überlegenheit des Th-232-Radiators für den Nachweis kleiner Dosen erwarten.

### 5.3 Spaltung durch thermische Neutronen

#### Wismuth-Radiator

Bi-209 wird durch thermische Neutronen nicht gespalten.

#### Thorium-Radiator

Neben dem Spaltquerschnitt für schnelle Neutronen ( $\sigma_F$ ) hat Th-232 auch einen für thermische Neutronen ( $\sigma_{th}$ ):

$$\sigma_F \approx 0,5 \text{ barn}$$

$$\sigma_{th} \approx 4 \cdot 10^{-5} \text{ barn}$$

Wenn also der thermische Fluß genausogroß ist wie der schnelle ( $\frac{\phi_F}{\phi_{th}} = 1$ ), wird das Verhältnis der Spurenzahl aus thermischer und schneller Spaltung:

$$\frac{N_F}{N_{th}} = 1,25 \cdot 10^4,$$

ein Wert, der vermutlich völlig unkritisch ist.

#### Uran-Radiator

U-238 wird nicht von thermischen Neutronen gespalten, wohl aber U-235, das in abgereichertem Uran noch zu ca. 0,4% enthalten ist. Zu vergleichen sind also:

$$\sigma_{th} \text{ (U-235)} = 584 \text{ barn}$$

$$\sigma_F \text{ (U-238)} = 1 \text{ barn}$$

Für ein Flußverhältnis

$$\frac{\phi_F}{\phi_{th}} = 1$$

erhält man ein Verhältnis der Spurenzahlen aus schneller und thermischer Spaltung von:

$$\frac{N_F}{N_{th}} = 0,43$$

d.h., aus der erwünschten Nachweisreaktion würden nur etwa halb so viele Spuren entstehen wie durch den Störeffekt. Der Einsatz eines Uran-Radiators ist also nur dann sinnvoll, wenn der thermische Fluß deutlich kleiner ist als der schnelle. Um ähnliche Verhältnisse wie beim Thorium-Radiator zu erreichen, könnte man das Dosimeter mit einer Cadmium-Umhüllung versehen, in der der thermische Fluß um Faktor  $10^5$  reduziert wird:

$$[4] \quad \frac{\Phi_{th}(Cd)}{\Phi_{th}} = e^{-\sigma_{abs} \cdot n \cdot x} \quad (\approx 10^{-5})$$

$\sigma_{abs}$ : Totaler Absorptionsquerschnitt für thermische Neutronen in Cadmium

n: Teilchendichte ( $cm^{-3}$ ) ( $n = \frac{\sigma \cdot A}{m_A}$ )

x: Absorberdicke

Für Cd mit

$$\begin{aligned} \sigma_{abs} &= 3000 \text{ barn} \\ n &= 4,6 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3} \end{aligned}$$

ist die erforderliche Absorberdicke:

$$x_{Cd} = 0,8 \text{ mm}$$

Aber auch die Cd-Abschirmung des Uranradiators gewährleistet keine eindeutigen Ergebnisse.

Abb. 5 zeigt, daß Cd für Neutronen mit einer Energie oberhalb 1 eV bereits wieder durchlässig ist, U-235 aber auch im Bereich 1 eV bis 1 MeV mit einem Wirkungsquerschnitt von 5-10 barn gespalten wird.

#### 5.4 Spaltung durch hochenergetische Photonen

U-238 und Th-232 haben für hochenergetische Photonen einen relativ hohen Spaltquerschnitt [15]. Nach Abb. 6 ist das  $\sigma(\gamma, f)$  für 15 MeV-Photonen:

$$\text{U-238} : \sigma_F \approx 170 \text{ mbarn}$$

$$\text{Th-232} : \sigma_F \approx 50 \text{ mbarn}$$

Bi-209 wird nur durch Photonen mit viel höherer Energie gespalten, bei 1-6 GeV wurde ein mittlerer Wirkungsquerschnitt von 0,4 mbarn gemessen [16].

Es ist zu vermuten, daß hinter der Beschleuniger-Abschirmung in den HERA-Hallen der hochenergetische Photonenfluß sehr klein ist und damit diese Effekte vernachlässigt werden können. Gegebenenfalls kann die  $\gamma$ -Strahlung durch eine Bleiabschirmung reduziert werden. Z.B. sind für 15 MeV-Photonen hinter 10 cm Blei nur noch 3% der ursprünglichen Intensität zu messen.

#### 5.5 Übersicht

Untergrund aus	Der Untergrund ist abhängig von				
	Ätzbedingungen	Expositionszeit ( $t_B$ )	Dosis (schnelle Neutronen)	Radiator	Dosis (sonstiger Strahlung)
$U_E$ Ätzung	+	-	-	-	-
$U_\alpha$ $\alpha$ -Strahlung	+	+	-	+	-
$U_R$ Rückstoßeffekte	+	-	+	-	-
$U_{SF}$ Spontanspaltung	-	+	-	+	-
$U_{th}$ thermische Spaltung	-	-	-	+	+
$U_{ph}$ Photofission	-	-	-	+	+

## 6. Meßergebnisse

Nach erfolgreichen Vorversuchen mit Mikroskopauswertung haben wir 8 µm dickes Makrofol eingesetzt und mit einem spark-counter ausgewertet, der dem Modell von Wilson [13] nachgebaut ist. Die Detektorfläche (Berührungsfläche Radiator/Folie) wurde letztlich bei 7,07 cm<sup>2</sup> (Radiator Ø: 3 cm) festgelegt. Es wurden Bestrahlungsversuche mit einer kalibrierten Cf-252-Spontanspaltungsquelle durchgeführt, also zunächst ohne Radiator.

Zum Testen der Radiatoren:

Th-232 (d= 0,50 mm)

abger. Uran (d= 0,11 mm)

stand eine Am-Be-Quelle mit kalibrierter Neutronendosisleistung zur Verfügung.

Folgende Auswerteprozedur wurde als optimal bestimmt:

Ätzbad: 6n NaOH bei 60° C, Ätzdauer: 2 h.

Danach kurzes Spülen mit dest. Wasser, längeres Baden (≈3/4 h) in fließendem Leitungswasser, dann wieder Spülen mit dest. Wasser und Trocknen bei 40 - 50° C.

Zählen: pre-sparking bei 1 kV, dann 3-5 mal Auszählen bei 600 V.

Die Folien wurden schon vor dem Bestrahlen auf PVC-Ringe geklebt, ein Verfahren, das später durch die Verwendung von Klemmringpaaren abgelöst wird. Einzelheiten der Versuchsdurchführung sind in [17] beschrieben.

### 6.1 Meßempfindlichkeit

Das Ansprechvermögen ( $\epsilon$ ) wird hier definiert als

$$\epsilon = \frac{\text{Zahl der gemessenen Spuren}}{\text{Zahl der auftreffenden Spaltfragmente}}$$

Die Zahl der auftreffenden Spaltfragmente ergibt sich bei der Cf-252-

Quelle aus der kalibrierten Spaltproduktemission und für Am-Be-Neutronen mit Radiator aus Gl. (2). Für die beiden Radiatoren ist die Zahl der gemessenen Spuren bei Bestrahlung mit Am-Be-Neutronen und Standard-Auswerteprozedur:

		Detektorfläche: 7,07 cm <sup>2</sup>
Thorium	2,0 $\frac{\text{tr}}{\text{cm}^2 \cdot \text{mSv}}$	14,4 ± 0,9 $\frac{\text{tr}}{\text{mSv}}$ , 1 tr ≙ 69,4 μSv
Uran	6,8 $\frac{\text{tr}}{\text{cm}^2 \cdot \text{mSv}}$	48,4 ± 2,4 $\frac{\text{tr}}{\text{mSv}}$ , 1 tr ≙ 20,7 μSv

Die Fehlerangaben gelten für 10 mSv

Das Ansprechvermögen ergibt sich daraus zu:

Thorium: 44%  
Uran : 41%  
Cf-252 : 57%

Für Thorium wurde z.B. auch von Prêtre [18] ein Ansprechvermögen von 40% angegeben. In Abb. 10 sind die jeweiligen response-Kurven in Abhängigkeit von der Ätzdauer aufgezeichnet. Nach 2 h wird ein Plateau erreicht, so daß längere Ätzzeiten nicht sinnvoll sind, zumal auch der Untergrund z.T. mit größerer Ätzdauer ansteigt.

## 6.2 Untergrund

So weit möglich, wurden Untergrund und Störeffekte experimentell untersucht. Beim Ätzuntergrund zeigte sich, daß die Spurenzahl für neu erworbenes Makrofol Faktor 3 kleiner ist als bei altem Material (Lagerzeit ≈ 5 Jahre). Außerdem erhält man bei 2 h Ätzzeit ca. Faktor 5 weniger Spuren als bei 3 h.

Alphastrahlung von den Th-232- und U-238-Radiatoren sowie von einer Am-241-Quelle war bei unseren Auswerteparametern nicht nachzuweisen. Durch Neutronenbestrahlung von Makrofol ohne Radiator konnten jedoch Spuren aus Rückstoßeffecten gemessen werden. Deren Zahl ist allerdings, verglichen mit den Th- und U-Empfindlichkeiten, vernachlässigbar klein. Der größte meßbare Effect ist die Spontanspaltung von U-238 und Th-232. Die gefundenen Spurenzahlen stimmen in der Größenordnung mit den berechneten Werten überein und bestätigen daher die Überlegenheit von Thorium.

Mit der Standard-Auswerteprozedur wurde pro Film (Fläche: 7,07 cm<sup>2</sup>) folgender Untergrund gemessen:

$U_E$  : (0,26 ± 0,13) tr  
 $U_\alpha$  : 0,0 tr  
 $U_R$  : ≈ 0,02 tr/mSv  
 $U_{SF}$ : Thorium: (1,8 ± 0,8) tr/Monat  
Uran : (230 ± 15) tr/Monat

### 6.3 Kritische Spurendichte

Makrofol wurde solange mit der Cf-252-Quelle bestrahlt, bis 100 - 1000 Spaltprodukte pro cm<sup>2</sup> auf dem Film aufgetroffen waren. In Abb. 11 ist dargestellt, wieviele Spuren/cm<sup>2</sup> davon gemessen wurden. Bis zu 200 tr/cm<sup>2</sup> ist das Verhältnis konstant, danach wird die relative Ausbeute kleiner. Diese kritische Spurendichte sollte möglichst nicht überschritten werden. Bei 7,07 cm<sup>2</sup> Detektorfläche kann man also bis zu 1500 tr/Film problemlos messen. Für größere Spurendichten kann Abb. 11 zur Korrektur herangezogen werden, es sei denn, bei der Auswertung sind größere isolierte Inseln nicht erfaßt worden.

### 7. Kleinste und größte nachweisbare Dosis

Der Dosisbereich, in dem gemessen werden kann, ist nach oben hin begrenzt durch die kritische Spurendichte der spark-counter-Zählung. Je unempfindlicher also der Radiator ist, desto höhere Dosen können gemessen werden. Die untere Dosis-Nachweisgrenze ist dadurch gegeben, wie sich das Meßsignal statistisch vom Untergrund abhebt. Hier ist ein Radiator günstig, der wenig Untergrundspuren erzeugt (wie Thorium) und dabei möglichst viele Spuren pro Dosiseinheit produziert (wie Uran).

Die untere Nachweisgrenze wird mit größerer Meßzeit und Filmfläche kleiner; für ihre Abschätzung wird hier vorausgesetzt, daß das kleinste meßbare Nettosignal (S) Faktor 3 über der Standardabweichung des Untergrundes (U) liegen sollte:

$$S = 3 \cdot \sqrt{U}$$

Das Untergrundsignal setzt sich zusammen aus:

$$U(t) = U_E + U_{SF}(t)$$

Mit gemessenen Untergrund- und  $\epsilon$ -Werten ergeben sich bei Am-Be-Neutronenbestrahlung von Thorium- und Uranradiatoren ( $\emptyset$  3 cm) für verschiedene Expositionszeiten ( $t_B$ ) folgende Dosisbereiche:

$t_B$	Radiator	$H_{min}$	$H_{max}$
		(mSv)	
8 h	Th	0,14	100
	U	0,10	31
7 d	Th	0,21	100
	U	0,46	30
30 d	Th	0,35	100
	U	0,93	26
90 d	Th	0,56	100
	U	1,60	17

Demnach können mit Thorium sowohl kleinere wie auch größere Dosen als mit Uran gemessen werden. Nur bei kurzen Bestrahlungszeiten ist Th nicht vorteilhaft, weil dann der Ätzuntergrund dominierenden Einfluß hat. Bei einer Expositionszeit von 3 Monaten kann mit einem Thorium-Radiator (Detektorfläche 7,07 cm<sup>2</sup>) eine Neutronendosis von 0,2 mSv pro Monat gemessen werden. Zur Ermittlung des Fehlers sind noch Bestrahlungsserien mit langer Expositionszeit und kleiner Dosisleistung geplant. Außerdem muß öfter die Größe des Makrofol-Ätzuntergrundes kontrolliert werden, der innerhalb einer Lieferung allerdings relativ konstant ist.

Hochenergetische Neutronen:

Eine Abschätzung der Dosisbereiche für 100 MeV-Neutronen ist mit den berechneten Spurenausbeuten nach Gl. 1 möglich, so daß auch Bi-209 einbezogen werden kann. Für die Rechnungen wurden die theoretischen Werte mit einer efficiency von  $\epsilon = 0,42$  multipliziert.

Damit wäre:

Th-232 : 1 tr  $\hat{=}$  16,0  $\mu$ Sv

U-238 : 1 tr  $\hat{=}$  13,2  $\mu$ Sv

Bi-209 : 1 tr  $\hat{=}$  290  $\mu$ Sv

Für Bi-209 ist die minimal und maximal meßbare Dosis nicht von der Expositionszeit abhängig, weil es keine Untergrundspuren erzeugt. Die Begrenzungen sind nur gegeben durch den Ätzuntergrund und die kritische Spurendichte.

Bei einer Expositionszeit von 3 Monaten sind die meßbaren Dosisbereiche für 100 MeV-Neutronen

Th-232 : 0,080 mSv <H <24,0 mSv

U-238 : 0,59 mSv <H <17,0 mSv

Bi-209 : 0,58 mSv <H <435 mSv

Bei 700 MeV ist der Wirkungsquerschnitt von Bi-209 maximal (0,25 barn), d.h.:

1 tr  $\hat{=}$  58  $\mu$ Sv

0,12 mSv <H <87 mSv

Also kann man auch für sehr hochenergetische Neutronen mit einem Bi-209-Radiator gute Nachweisgrenzen erreichen. Es muß jedoch später noch untersucht werden, ob bei sehr hochenergetischen Neutronen (> 100 MeV) die Spurenzahl durch Rückstoßeffekte größeren Einfluß hat.

## 8. Zusammenfassung

In Hinblick auf die Dosimetrie hochenergetischer Neutronen bei HERA wurde der Nachweis von Spaltfragmenten in Festkörperspurdetektoren erprobt. In Laborversuchen mit Am-Be-Neutronen konnten die Spaltprodukte aus den (n,f)-Reaktionen von Th-232 und U-238 (Schwellenenergie ca. 1,3 MeV) in „Makrofol“-Polycarbonatfolie gut nachgewiesen werden, sowohl mit dem Mikroskop, wie dann auch mit einem Funkenzähler. Es wurden experimentell für 8  $\mu$ m dicke Folie

die optimalen Auswertebedingungen für den spark-counter ermittelt. Bei einer Detektorfläche von  $7,07 \text{ cm}^2$  wurden für Thorium 14.4, für abgereichertes Uran 48.4 Spuren pro mSv gemessen, das entspricht einem Nachweisvermögen von ca. 43%. Soweit möglich, wurden Untergrund und Störeffekte untersucht. Dabei zeigte sich, daß U-238 für den Nachweis kleiner Dosen nicht gut geeignet ist, weil die Spontanspaltungsrate zu hoch ist. Mit Th-232 können bei 3 Monaten Expositionszeit mindestens  $0,2 \text{ mSv}$  pro Monat nachgewiesen werden.

Rechnerisch ist derselbe Wert für  $100 \text{ MeV}$ -Neutronen auch mit Bi-209 zu erreichen, es liegen jedoch mangels geeigneter Neutronenquelle (Schwellenenergie:  $50 \text{ MeV}$ ) keine experimentellen Daten vor.

Aufgrund der vorliegenden Ergebnisse (Details in Laborbericht [17]) ist der Einsatz von Th-232- und auch Bi-209-Radiatoren bei HERA geplant. Zur richtigen Interpretierung der gemessenen Spurenzahlen müssen dann noch Informationen über das Neutronenspektrum und den hochenergetischen Photonenfluß hinzugezogen werden.

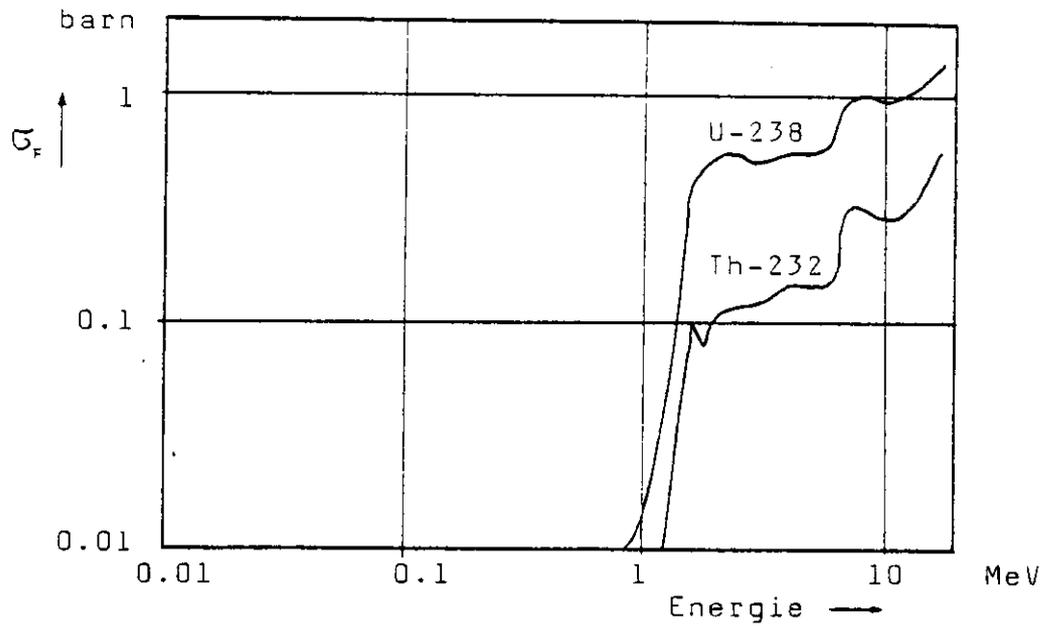
Literatur

- [1] J.D. Cossairt, A.J. Elwyn; Personal Dosimetry in a mixed Field of high-energy muons and neutrons, Health Physics Vol. 52, Nr. 6. pp. 813-816, 1987
  
- [2] M. Fülöp, K. Turek, G. Somogyi; A contribution to neutron dosimetry at the Synchrocyclotron at the Joint Institute for Nuclear Research, Dubna, IAEA-SM-229/106, 1978
  
- [3] J.B. McCaslin et al.; Measurement of Neutron Spectra and Doses in the Tevatron Tunnel for 800 GeV circulating Proton Beams, Fermilab-Report SSC-58, 1986
  
- [4] K. Becker, A. Scharmann; Einführung in die Festkörperdosimetrie; Thiemig-Verlag, 1975
  
- [5] K. Becker; Solid State Dosimetry; CRC-Press, 1973
  
- [6] S.A. Durrani, R.K. Bull; Solid State Nuclear Track Detection, Pergamon Press, Oxford, 1987
  
- [7] B. Dörschel; Stand und Entwicklungstendenzen des Einsatzes von Festkörperspurdetektoren in der Strahlenschutzmeßtechnik, Kernenergie Nr. 1, S. 1-11, 1980
  
- [8] W.G. Gross, L. Tommasino; A rapid reading technique for nuclear particle damage tracks in thin foils, Radiation effects, Vol. 5, pp. 35-89, 1970
  
- [9] K. Becker; Nuclear track registration in dosimeter glasses for neutron dosimetry in mixed radiation fields, Health Physics Vol. 12, pp. 769-785, 1966

- [10] Prêtre, S., Tochilin, E., Goldstein, N.; Proc. First Int. Cong. IRPA, Rome, 1966, Part 1, Pergamon Press, Oxford, 491, 1968.
- [11] H. Kluge, K. Weise; The neutron energy Spectrum of a  $^{241}\text{Am}$ -Be ( $\alpha, n$ ) source and resulting mean fluence to dose equivalent conversion factors; Rad. Prot. Dos., Vol.2 Nr. 2, pp. 85-93; 1982.
- [12] K.G. Harrison, I.B. Hancock, P.D. Holt, J.W. Wylie; AERE-R 8844, Harwell, Oxfordshire, 1977.
- [13] C.K. Wilson; The jumping spark-counter and its development as an aid to measuring alpha activity in biological and environmental samples; Nucl. Tracks, Vol.6, No. 2/3, pp. 129-139, 1982.
- [14] E. Piesch, J. Jasiak; Automatic spark counting of fast neutron induced recoil particles in polymeres; Nucl. Instr. Meth. 147, pp. 57-62, 1977.
- [15] Handbook on nuclear activation data, IAEA, Technical Reports Series No. 273, 1987.
- [16] H.G. de Carvalho et al.; Photofission Cross-Sections of  $^{209}\text{Th}$  and  $^{238}\text{U}$  above 1 GeV; Lettere al nuovo cimento Vol.14, N. 17, 1975.
- [17] B. Racky; Test eines Festkörper-Spurendetektors für die Neutronendosimetrie bei HERA; Laborbericht DESY-D3-49; 1988.
- [18] S. Prêtre, K. Heusi; Routine- und Unfall-Personendosimetrie mit Festkörper-Spaltspur-Detektoren für thermische und schnelle Neutronen mit automatisierter Auswertung; EIR-Bericht, Würenlingen, 1972.

Abb. 1: Spaltquerschnitt verschiedener Schwellwertdetektoren in Abhängigkeit von der Neutronenenergie (s. [4]) :

a) Neutronenenergie 10 keV bis 20 MeV



b) Neutronen-/Protonenenergie 100 MeV bis 100 GeV

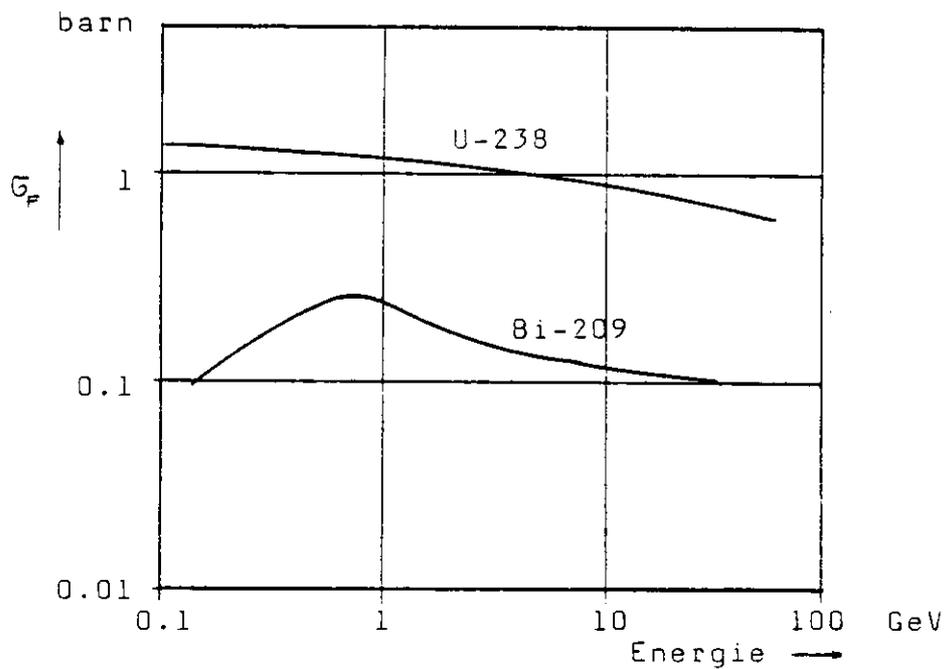


Abb. 2: Energieabhängigkeit des Dosisäquivalent- Konversionsfaktors  $h_{\phi}$  nach den Daten von ICRP-21:

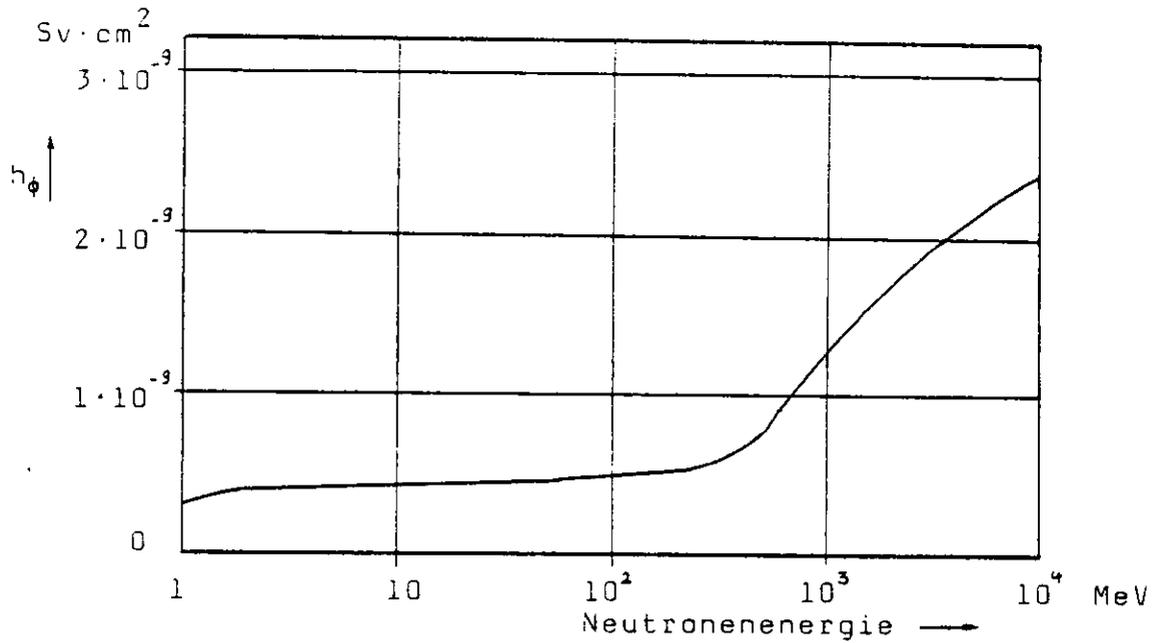
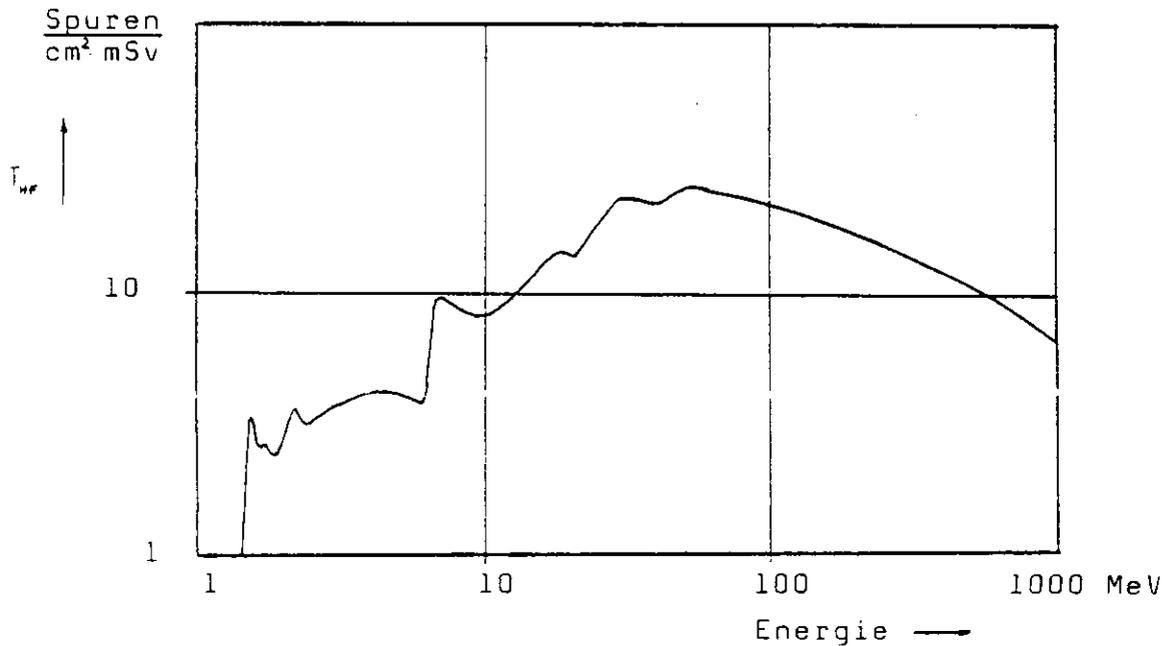
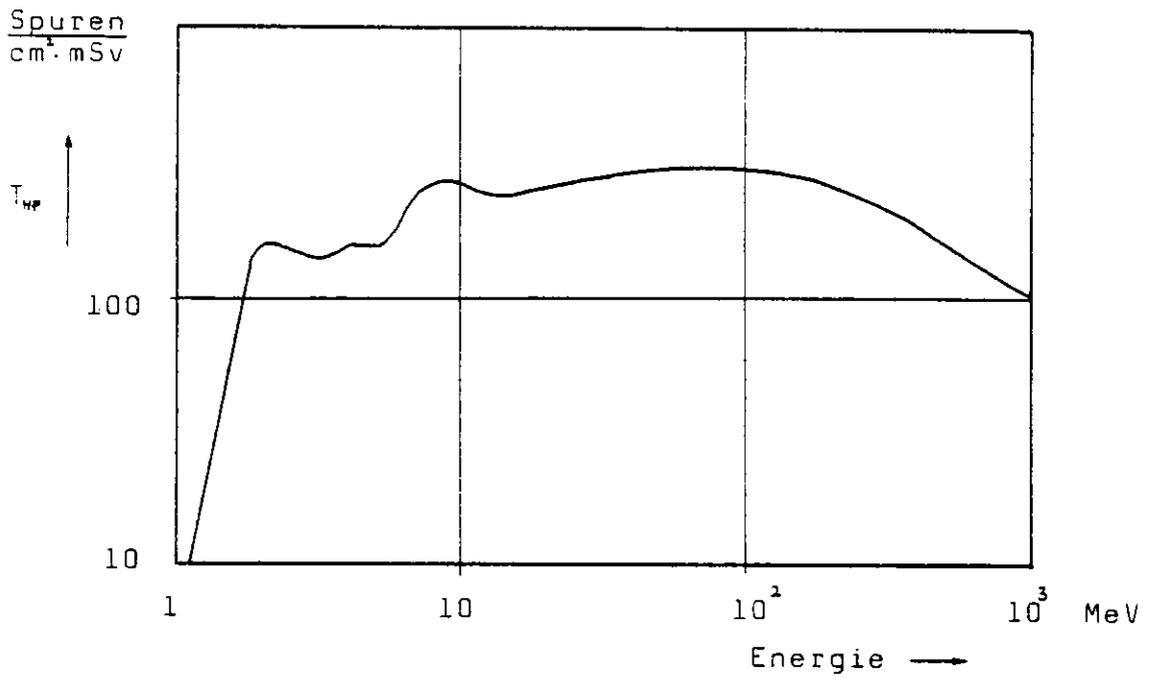


Abb. 3: Maximal sichtbare Spaltproduktspurenzahl pro  $\text{cm}^2$  und mSv ( $T_{\text{nr}}$ ) als Funktion der Neutronenergie für einen Festkörperspuredetektor (nach Gl.1) mit

a) Thorium- Radiator



b) Uran- Radiator



c) Wismuth- Radiator

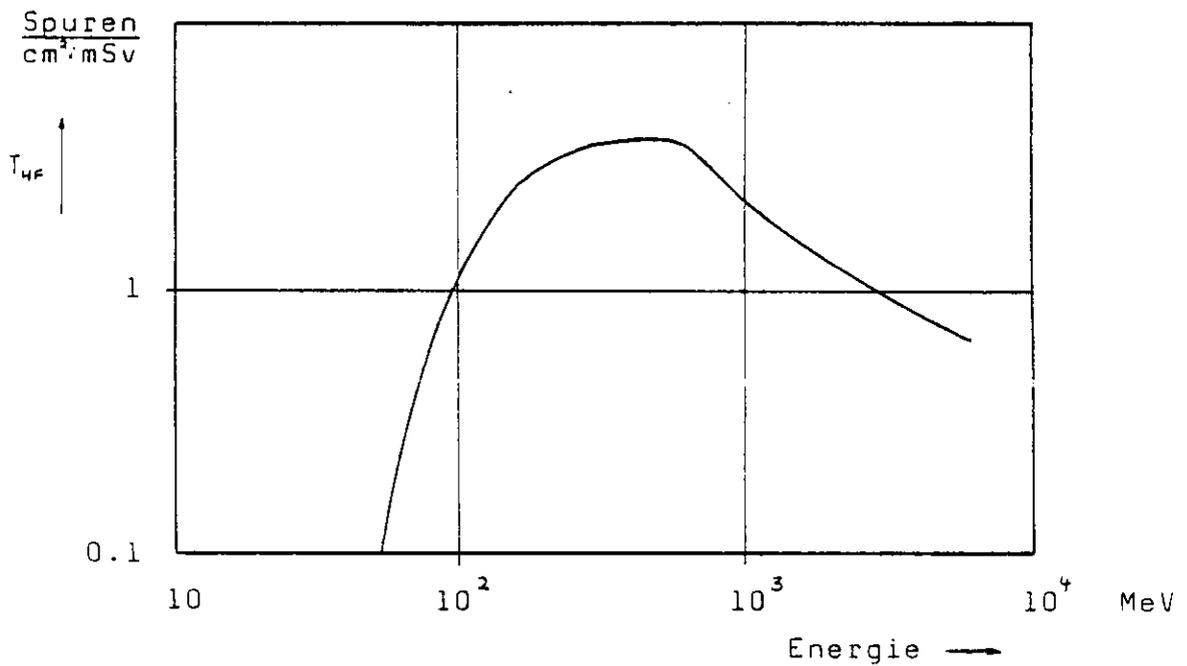
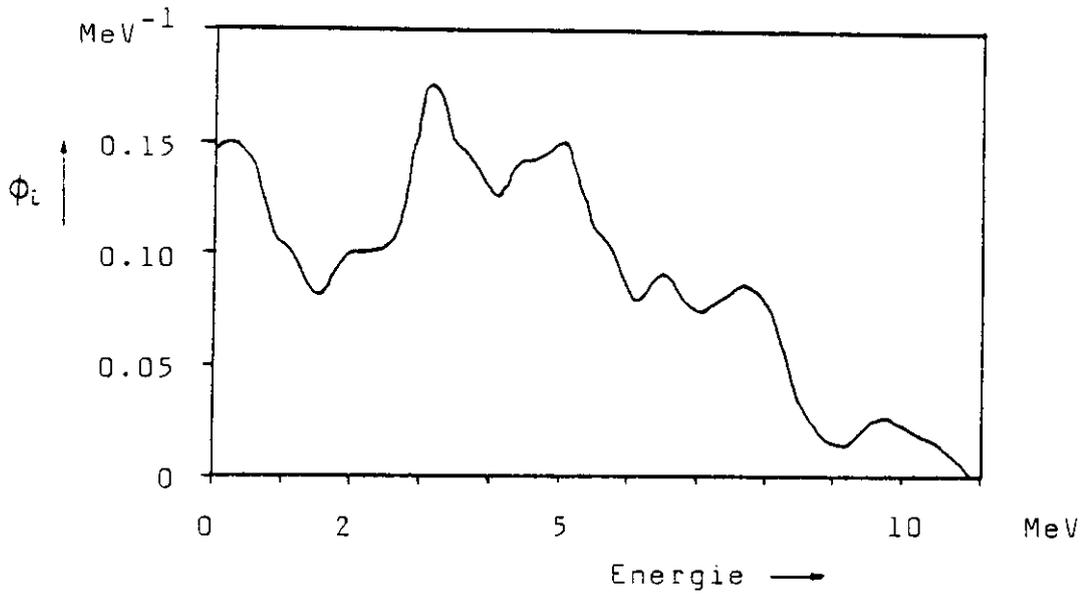


Abb. 4: Neutronenspektrum einer Am-Be - Quelle (nach [11] ) :



$\phi_i$  : Relative Flußdichte pro Energieintervall

Abb. 5: Spaltquerschnitte von U-235 und U-238 und Absorptionsquerschnitt von Cadmium

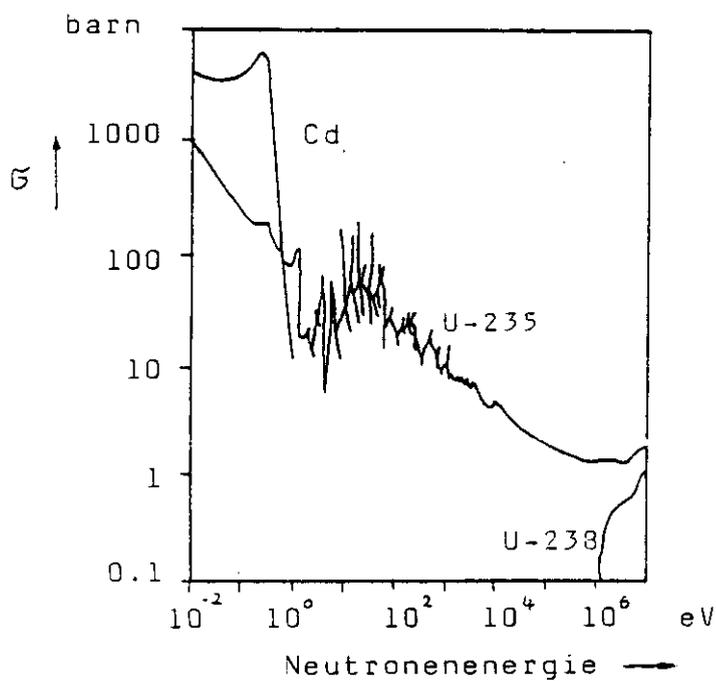
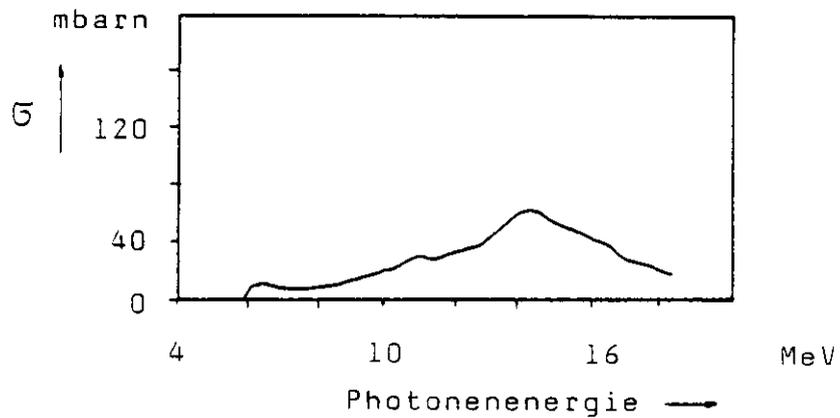


Abb. 6: Spaltungsquerschnitte für hochenergetische Photonen nach [15] :

a) Th-232



b) U-238

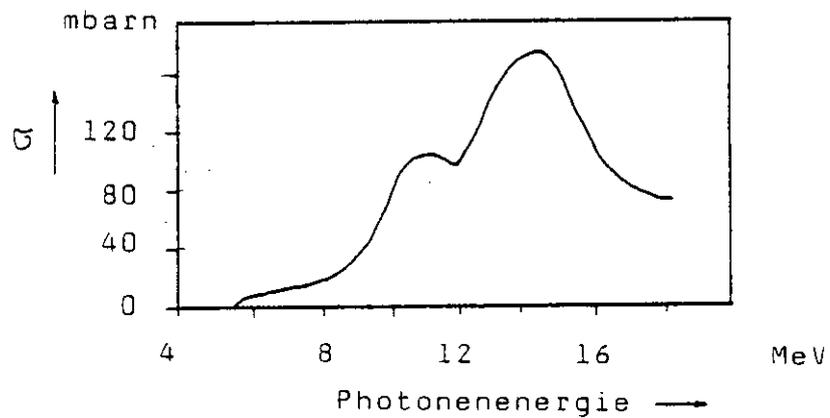


Abb. 7: Spark-Counter ; Durchmesser der Elektrode: 3.4 cm

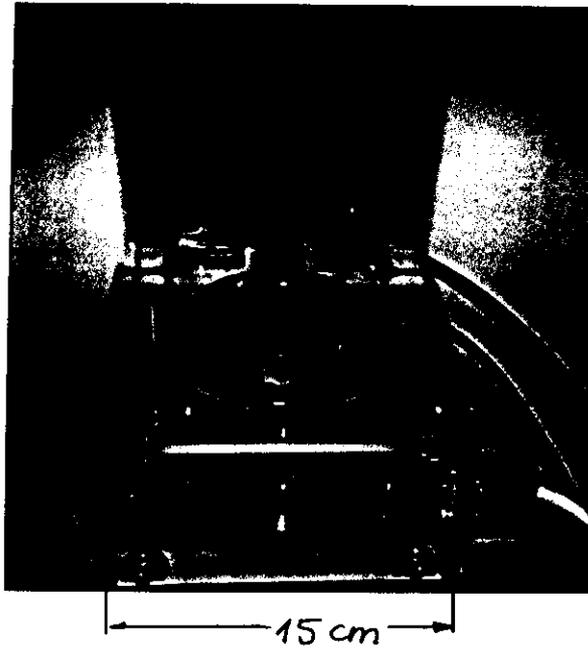


Abb. 8: Schaltbild des Spark- Counters:

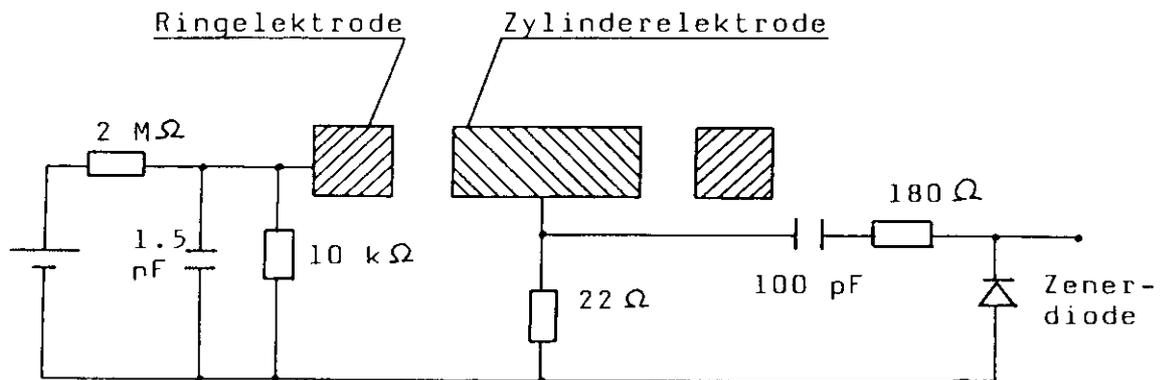
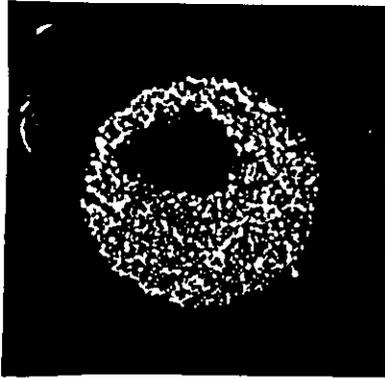
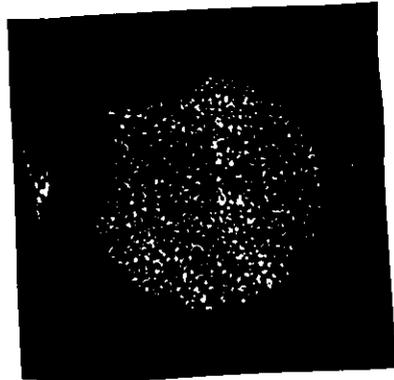


Abb. 9: Aluminiumfolie nach dem Auszählen von Makrofol  
mit dem Spark- Counter

a) pre-sparking bei 1000 V  
(mit isolierter Insel)



b) Zählspannung 600 V



Bestrahlung des Films: Uranradiator; Am-Be-Neutronen  
Dosis: 30 mSv; 1700 Spuren, bzw.  
240 Spuren/cm<sup>2</sup>

Abb. 10: Nachweisvermögen des Spark- Counters in Abhängigkeit von der Ätzdauer des Makrofol-Films (6n NaOH, 60 C)

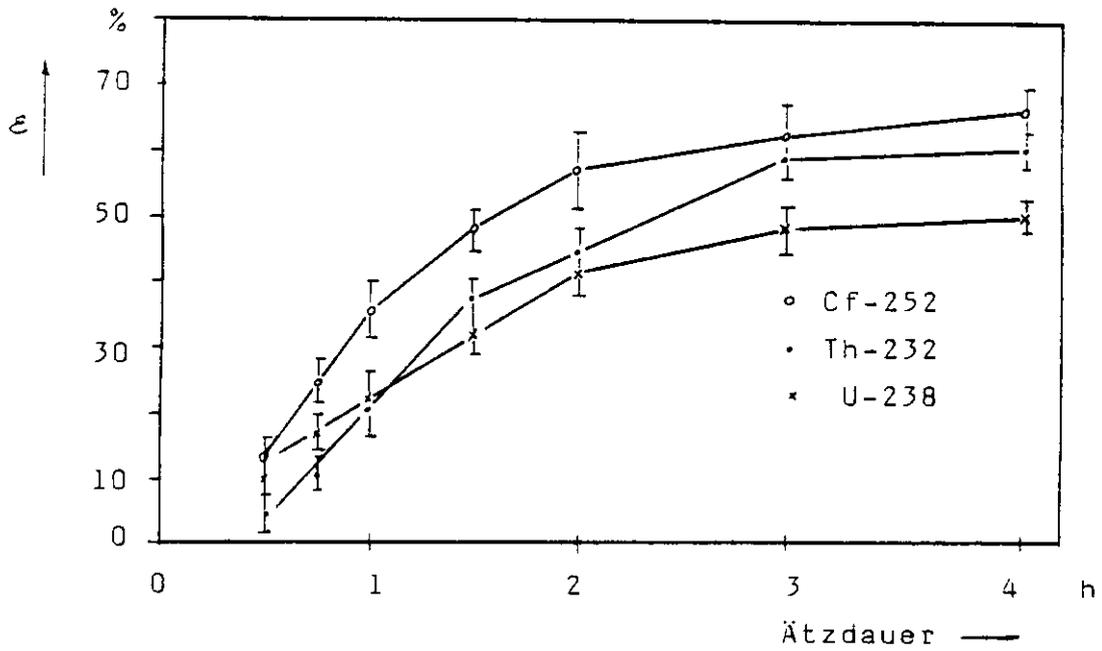


Abb. 11: Zählraubeute in Abhängigkeit von der Spurendichte  
Ätzbad: 6n NaOH, 60 C, 2 h  
Bestrahlung: Spaltfragmentquelle Cf-252

