Zivilschutz-Forschung

Schriftenreihe der Schutzkommission beim Bundesminister des Innern

Herausgegeben vom Bundesamt für Zivilschutz Neue Folge Band 3

Burkhard Lommler, Eberhard Pitt,
Arthur Scharmann, Rolf Simmer

Der Nachweis schneller Neutronen in der Katastrophendosimetrie mit Hilfe von Ausweisen aus Plastikmaterial

ISSN 0343-5164

Zivilschutz-Forschung

Schriftenreihe der Schutzkommission beim Bundesminister des Innern

Herausgegeben vom Bundesamt für Zivilschutz Neue Folge Band 3

Burkhard Lommler, Eberhard Pitt,
Arthur Scharmann, Rolf Simmer

Der Nachweis schneller Neutronen in der Katastrophendosimetrie mit Hilfe von Ausweisen aus Plastikmaterial

ISSN 0343-5164

Herausgeber: Bundesamt für Zivilschutz,
Deutschherrenstraße 93-95, 5300 Bonn 2
Schriftleitung und Redaktion: Carl Maier
Die Beiträge geben die Meinung der Autoren wieder. Sie stellen keine Äußerung des Herausgebers dar und sind auch nicht als solche auszulegen.

© 1990 by Bundesamt für Zivilschutz, Bonn 2
Satz und Druck: Druckerei Günter Runge, Cloppenburg

Inhalt

1 Einleitung 7

2 Dosimetrie im Katastrophenfall 8

3 Sichtbarmachung latenter Kernspuren 10

3.1 Chemisches Ätzen (CE) 10

3.2 Elektrochemisches Ätzen (ECE) 12

4 Das Detektormaterial 15

5 Auswertung neutronenbestrahlter Detektoren 17

5.1 Die Apparatur für elektrochemisches Ätzen 17
5.2 Aussehen und Größe der ECE-Spuren 20
5.3 Auszählen geätzter Detektoren 20
5.3.1 Manuelle Zählung 20
5.3.2 Automatische Zählung 21
5.4 Berechnung der Nachweiswahrscheinlichkeit 21
6 Experimentelle Untersuchungen 23
6.1 Neutronenbestrahlungen mit Cf-252 Quelle 23
6.1.1 Laugeneinfluß 24
6.1.1.1 Konzentration 24
6.1.1.2 Ätzabbauprodukte 26
6.1.2 Dosisabhängigkeit der Spurenrate 28
6.1.3 Fading 31
6.2 Energie- und Winkelabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit 32
6.2.1 Bestrahlung und Auswertung 33
6.2.2 Meßergebnisse 35
6.2.3 Diskussion der Ergebnisse 38
6.3 Untersuchungen an getragenen Ausweisen 40
6.3.1 Nullrate 41
6.3.2 Dosisbestimmung bei hoher Nullrate 43

7 Zusammenfassung **50**

8 Empfehlungen **52**

9 Literaturverzeichnis 53

Anhang I
A.I Entstehung latenter Spuren 55
A.L1 Wechselwirkung geladener Teilchen mit Materie 55
A.1.2 Spurbildungsmodelle 56
A.1.3 Wechselwirkung von Neutronen mit Materie 59

Anhang II
A.II Neutronenquellen 62
A.II. 1 Radionuklidquellen 62
AJL 1.1 Cf-252 Quelle 62
A.II.1.2 Am-Be Quelle 63
A.II. 1.3 Berechnung der Neutronenfluenz 63
A.II.2 Neutronengeneratoren 64

Die Autoren 66

1 Einleitung

In der Mitte der 70er Jahre setzte die Diskussion um die Neutronenwaffe ein. Bei dieser Entwicklung handelt es sich um eine thermonukleare Waffe kleinen Kalibers, deren Druckzerstörungsradius wesentlich kleiner ist als der Bereich, in dem lebensbedrohende Initialstrahlung (Neutronen- und Gammastrahlung) auftritt. Im Gegensatz dazu wirken die großkalibrigen Kernwaffen vor allem durch Hitze, Druck und radioaktiven Fallout. Auch Spaltwaffen kleiner Sprengkraft können wegen ähnlicher Wirkung als „Neutronenwaffen'[4] angesehen werden [I].

Bei einem Einsatz dieser Waffen im Verteidigungsfall stellt sich das Problem, die Strahlenexposition von Personen zu ermitteln, die in den Randzonen des Einsatzgebietes der Strahlung ausgesetzt waren. Die Kenntnis der Strahlendosis ermöglicht dem Arzt eine Entscheidung über Art und Umfang von Therapiemaßnahmen. Dem Neutronenanteil der Dosis ist aufgrund der großen biologischen Wirksamkeit schneller Neutronen besondere Beachtung zu schenken [2]. Da die Zivilbevölkerung nicht mit speziellen Dosimetern ausgerüstet ist, werden in der Zivilschutzforschung verstärkt Verfahren zur Erfassung der Neutronendosis mit kommerziell erhältlichen Materialien untersucht [3].

Als Nachweisverfahren bietet sich das in der Strahlenschutzdosimetrie praktizierte Kernspurätzen mit Kunststoffolien an. Dieses Verfahren beruht auf der Sichtbarmachung von lokalen Materialschädigungen, welche die von Neutronen erzeugten Rückstoßkerne im Festkörper hinterlassen. Während in der Strahlenschutzdosimetrie bereits seit einigen Jahren Kernspurätzdosimeter eingesetzt werden, waren bis jetzt keine Materialien bekannt, die sich für die Kernspurätzmethode eignen und gleichzeitig in der Bevölkerung so weit verbreitet sind, daß sie für Zwecke der Katastrophendosimetrie in Frage kommen.

In den vergangenen Jahren wurden zunehmend Plastikkarten als Mitglieds- und andere Ausweiskarten eingeführt. Sie bestehen in der Regel aus einem Informationsträger in einer Kunststoffhülle. Falls diese Kunststoffhülle aus geeignetem Material zusammengesetzt ist, sollte es möglich sein, damit schnelle Neutronen zu erfassen und die entstandenen Spuren mit der Kernspurätzmethode sichtbar zu machen. Die Eigenschaften des Materials hinsichtlich der Ätzparameter, Fading, Energie- und Winkelabhängigkeit sowie der Einfluß der Abnutzung durch Gebrauch auf das Nachweisverhalten wurden experimentell untersucht und im Hinblick auf die Anforderungen in der Katastrophendosimetrie bewertet.

2 Dosimetrie im Katastrophenfall

Die Katastrophendosimetrie hat die Aufgabe, im Falle einer militärischen oder zivilen Strahlenexposition großer Bevölkerungsteile Meßverfahren zur schnellen Ermittlung der Strahlendosis bereitzustellen. Speziell bei Kernwaffen beruht die Strahlenwirkung auf der unmittelbar bei der Explosion freiwerdenden Initialstrahlung mit je nach Abstand unterschiedlichen Gamma- und Neutronenanteilen. Hinzu kommt die Nachwirkung durch den Fallout, der sich aus Spaltprodukten und den durch Kernreaktionen in der Luft und im Erdboden gebildeten radioaktiven Isotopen zusammensetzt.

Bei kleinen, taktischen Spaltwaffen mit Explosionsstärken um 1 kT TNT ist der Bereich, in dem die Strahlung schwere Krankheit mit Todesfolge verursacht (Dosis > 5 Sv), doppelt so groß wie der Wirkungsbereich von Druckstoß und Hitzestrahlung [1]. Mit der Entwicklung kleiner Fusionswaffen konnte die Reichweite des Strahlungsfeldes und der Neutronenfluß gegenüber einer Spaltwaffe gleicher Stärke vergrößert werden bei gleichzeitiger Verringerung des Zerstörungsgebietes und der Spaltproduktmenge. So wird bei der Explosion einer 1 kT-Bombe 50% der Gesamtenergie durch Neutronen aus den T-D- bzw. ^{7}Li-D Fusionsreaktionen (Neutronenenergie bis 14 MeV) abgeführt. Eine Fläche von etwa 2.5 km^2 (Radius 900 m) wird mit einer Dosis > 5 Sv beaufschlagt, während das Gebiet, in dem Gebäude erheblich beschädigt werden, etwa 3,5mal kleiner ist.

Die dosimetrische Erfassung der Initialstrahlenwirkung ist ein wichtiges Ziel der Katastrophendosimetrie. Dabei ist die Kenntnis der Personendosis erforderlich, da sie dem Arzt Aussagen über eine notwendige Behandlung des Patienten ermöglicht. Für eine Eingrenzung des Personenkreises, der möglichst schnell einer Therapie zugeführt werden muß, ist eine Genauigkeit des Dosismeßwertes von etwa 20% ausreichend [4]. Schätzungen der Dosis als Funktion des Abstandes vom Einsatzort der Waffe sind wegen unkalkulierbarer Einflüsse (Stärke und Höhe der Explosion über dem Boden, Witterung, Abschattung durch Geländeformationen und Gebäude) zu unsicher.

Die Ermittlung strahlenbedingter Veränderungen im menschlichen Körper läßt eine genauere Aussage über die Dosis zu. Dazu wird zum Beispiel die Anzahl strahlengeschädigter Chromosomen als Maß für die Strahlendosis herangezogen. Diese biologische Dosimetrie ist wegen der erforderlichen manuellen Zählung sehr zeitintensiv und bei einer großen Zahl strahlenbelasteter Personen nicht realisierbar.

Der Dosisbereich, in dem eine erfolgversprechende Behandlung der Strahlenkrankheit sinnvoll ist, liegt bei 1-5 Sv [6]. Er kann von den aus der Strahlenschutz-Personendosimetrie bekannten Methoden (z.B. Thermo- und Radiophotolumineszenz, Exoelektronen-Emission, Kernspurätzdetektor, Zählrohr-Alarmdosimeter) im Prinzip abgedeckt werden. Da eine flächendeckende Einführung solcher Systeme jedoch aus politischen und finanziellen Gründen nicht zu erwarten ist, wird seit langem nach geeigneten Ersatzmethoden und -materialien zur Dosisabschätzung gesucht. Intensiv erforscht wurde hier unter anderem die Lyolumineszenz mit Zucker [7]. Dieses Verfahren erlaubt eine schnelle Abschätzung von Gamma-Ortsdosen mit ausreichender Genauigkeit.

Im Gegensatz dazu stellt die selektive Erfassung von Neutronendosen ein ernsthaftes Problem für die Katastrophendosimetrie dar. Die große biologische Wirksamkeit der Neutronen beruht auf ihrer Fähigkeit, durch elastische Stöße im Körpergewebe Rückstoßkerne zu erzeugen, die wegen ihrer hohen Ionisationsdichte eine einzelne Zelle wesentlich stärker schädigen (Doppelstrangbrüche der DNA) als Gammastrahlung, die nur schwach ionisierende Elektronen freisetzt. Entsprechend muß ein Neutronendosimeter in der Lage sein, einzelne neutroneninduzierte lokale Schäden zu registrieren. Die lokale Schädigung eines Materials durch Rückstoßkerne wird bei den Kernspurätzdetektoren zum Neutronennachweis ausgenutzt. Um eine ätzbare Spur zu erzeugen, ist eine Mindestschädigung des Materials entlang der Bahn des Rückstoßkerns erforderlich. Da dieser Schwellwert von Gammastrahlung außer bei extrem hohen Dosen nicht überschritten wird, ist ein selektiver Neutronennachweis mit Kernspurätzdetektoren möglich.

Die in der Strahlenschutzdosimetrie erprobten Detektormaterialien (z.B. Zellulosenitrat, Polycarbonate wie CR-39) stehen für Zwecke des Katastrophenschutzes nicht flächendeckend zur Verfügung. Die Plastikkarten hingegen finden in der Bevölkerung zunehmend Verbreitung. Falls daran mit der Kernspurätzmethode der selektive Neutronennachweis gelingt, ist eine prinzipielle Eignung als Katastrophendosimeter gegeben. Da sie normalerweise am Körper getragen werden, bieten sie die Möglichkeit zur Bestimmung der Personendosis.

Zur Auswertung der Dosimeter ist ein länger dauernder Ätzprozess (> 1 h) und eine Zählung der Kernspuren (manuell: 10—20 min) notwendig. Dies sollte in Kauf genommen werden, da gegenwärtig keine Alternative zur Erfassung der Personen-Neutronendosis im Katastrophenfall in Sicht ist und die Auswertung keine spezielle Ausbildung erfordert.

3 Sichtbarmachung latenter Kernspuren

Die von einem geladenen Teilchen im Festkörper hinterlassene geschädigte Zone (s. Anhang I) ist im optischen Mikroskop nicht sichtbar („latente Spur“). Selbst im Transmissionselektronenmikroskop konnten bisher nur die latenten Spuren schwerer Ionen als Störungen in der Gitterstruktur kristalliner Festkörper beobachtet werden [13, 19].

Die im folgenden beschriebenen Verfahren der chemischen Visualisierung sind sowohl auf anorganische als auch auf die für die Neutronendosimetrie wichtigen organischen Materialien anwendbar. Die geschädigte Zone wird hier durch einen chemischen oder elektrochemischen Ätzprozess so weit vergrößert, daß eine im optischen Mikroskop sichtbare Kernspur entsteht.

3.1 Chemisches Ätzen (CE)

Geeignete Ätzmittel für organische Detektormaterialien sind konzentrierte, wäßrige Lösungen von NaOH, KOH oder Mischungen davon [13, 19]. Durch hydrolytische Reaktion mit den OH^{-}-Ionen werden die Molekülketten des Polymers gespalten. Dabei entstehen Ätzabbauprodukte, die die Reaktionskinetik beeinflussen können [25]. Im Bereich einer latenten Spur ist die Aktivierungsenergie zur Bildung der Ätzprodukte herabgesetzt, der Ätzvorgang schreitet hier schneller voran als an der Oberfläche.

Eine grobe Charakterisierung dieses Verhaltens erfolgt durch Einführung einer Oberflächenätzgeschwindigkeit v_B und einer Spurätzgeschwindigkeit y_T. Sind v_T und v_B zeitlich konstant, entsteht aus einer latenten Spur ein Ätzkegel mit dem halben Öffnungswinkel (Abb. 1):

$$\delta = \arcsin (v_B/v_T) \qquad (1)$$

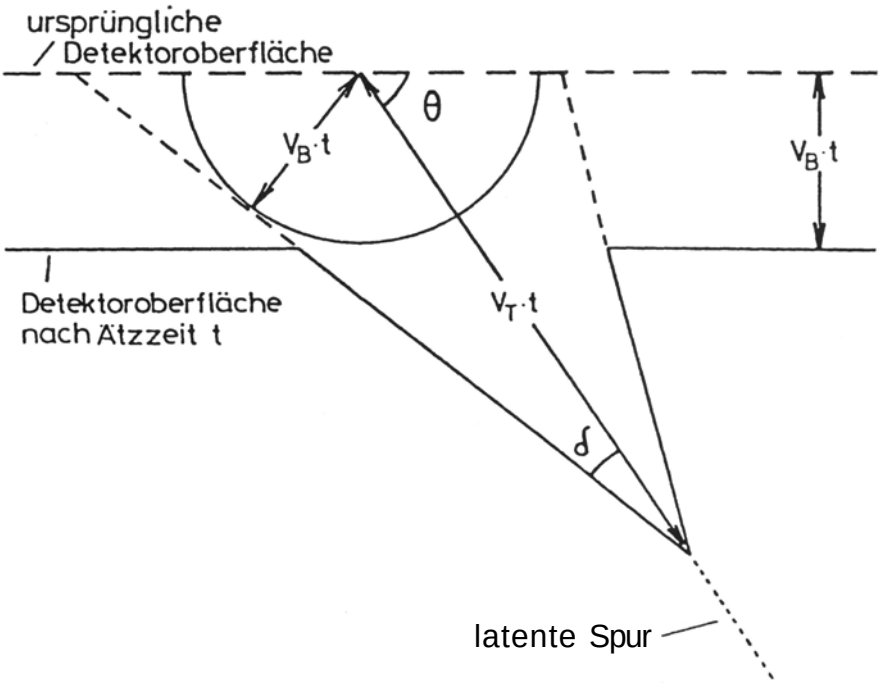


Abb. 1 Schematische Darstellung einer geätzten Kernspur

Der Ausdruck auf der rechten Seite der Gl. (1) hat gleichzeitig die Bedeutung eines „kritischen Winkels". Schließt die latente Spur einen Winkel Θ mit der Detektoroberfläche ein, muß die zur Detektornormalen parallele Komponente von v_T mindestens so groß wie v_B sein, damit der Atzkegel sichtbar wird, d.h. v_T-sin0 > v_B, oder:

$$Ø > \text{arc sin } (v_B/v_T) = Ø_C \qquad (2)$$

Oberflächen- und Spurätzgeschwindigkeit sind für ein bestimmtes Detektormaterial Funktionen von Temperatur und Konzentration der Ätzlauge. Die Temperaturabhängigkeit wird durch die ARRHENIUS-Beziehung wiedergegeben [13]:

$$v_B \sim \exp(-E_a/kT), \; v_T - \exp(-E_b/kT) \qquad (3)$$

E_a und E_b sind die zur Bildung der Ätzprodukte erforderlichen „Aktivierungsenergien", die in der Größenordnung 1 eV liegen. Das Kriterium (2) ist für Ø>O gleichbedeutend mit $E_b<E_a$. v_T hängt darüberhinaus vom REL (s. Anhang I) des spurerzeugenden Teilchens ab. Diese Abhängigkeit läßt sich in Verbindung mit Spurlängenmessungen für eine Teilchenidentifizierung ausnutzen [26].

Wird der Ätzvorgang über das Ende der latenten Spur hinaus fortgesetzt, kommt es zum „Uberätzen“ der Spur, der Ätzkegel wird gerundet und abgeflacht. Durch den schlechten optischen Kontrast ist die Spur im Mikroskop dann nicht mehr sichtbar. Neutroneninduzierte Spuren sind statistisch über das Detektorvolumen verteilt. Durch das Überätzen stellt sich ein Gleichgewicht zwischen der Zahl der pro Zeiteinheit neu entwickelten Spuren aus tieferen Schichten und der ausgeätzten Spuren aus oberflächennahen Schichten ein. Die Spurenzahl erhöht sich dann bei fortgesetztem Ätzen nicht weiter. Das elektrochemische Ätzverfahren überwindet diesen Nachteil durch Verlängerung der Ätzkanäle unter der Wirkung eines Hochspannungsfeldes.

3.2 Elektrochemisches Ätzen (ECE)

Dieses Verfahren wurde von TOMMASINO und ARMELLINI zur Spurenvergrößerung und Steigerung der Nachweisempfindlichkeit von Kernspurätzdetektoren eingeführt [27]. Ursprünglich auf Alpha- und Spaltfragmentspuren angewendet, erwies sich seine Eignung auch für neutroneninduzierte Spuren von Rückstoßkernen [28]. Das ECE-Verfahren beruht auf dem aus der Elektrotechnik bekannten „treeing“Effekt, der zur Zerstörung der Isolation von in feuchter Umgebung verlegten Hochspannungskabeln führt [29]. Während des chemischen Ätzens wird ein elektrisches Wechselfeld E mit einer Feldstärkeamplitude $E_0 \sim 10^4$ kV/cm und einer Frequenz f im Bereich $10\text{-}10^4$ Hz an den Detektor gelegt [3O]. Unter seinem Einfluß dringt verstärkt Lauge in das Polymer ein, besonders in die Bereiche der latenten Spuren. Durch materialabhängige, dielektrische Verluste $P \sim f E^2$ wird die Temperatur und damit die Reaktivität der Lauge erhöht [31]. Diese Effekte bewirken eine Zunahme von v_T und v_B; das Kriterium zur Ätzkegelbildung wird analog zum chemischen Ätzen durch Gl. (2) angegeben.

Der entlang der latenten Spur ausgeätzte und mit Lauge gefüllte Kanal wirkt als Nadelelektrode, durch die das elektrische Feld abhängig von der Krümmung der Elektrodenkontur verstärkt wird. An der Spurspitze wird die maximale Feldstärke E_{max} erreicht. Zur Berechnung der Feldverstärkung E_{max}/E_0 wurden verschiedene Modelle vorgeschlagen, die auf vereinfachten Spurgeometrien beruhen und durch Lösen der Laplacegleichung nach gewissen Näherungen einen geschlossenen Ausdruck für E_{max}/E_0 angeben.

Ein für die geometrischen Verhältnisse am Kernspurätzdetektor für Neutronen geeignetes Modell [32] beruht auf einer Ableitung von SMYTHE [33], Die Spurgeometrie wird durch einen Kreiszylinder der Länge L—r mit aufgesetzter Halbkugel vom Radius r angenähert, wobei $L/r \gg 1$ gilt (Abb. 2). Die Modellspur liegt zusammen mit der ebenen Elektrode 1 auf

dem Potential $V=E_0$-D. Die geerdete, ebene Gegenelektrode 2 muß so weit entfernt sein, daß D-d»r gilt (Abb. 2). Diese Bedingungen sind für Neutronendetektoren mit Dicken von 250—1500 μm und typischen Spurgrößen L=10-20 //m, r=0.01-0.1 μm sehr gut erfüllt.

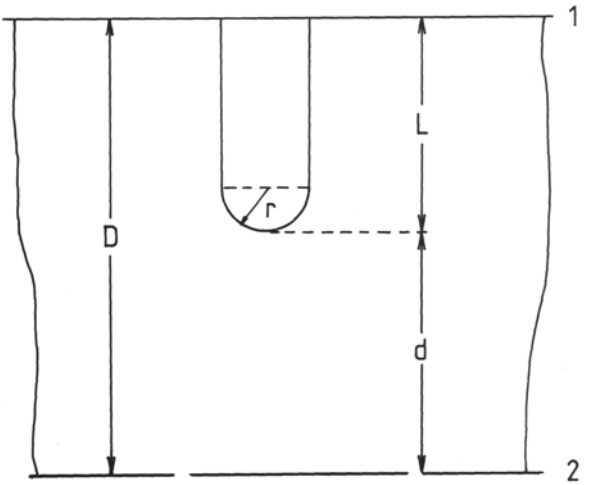


Abb. 2 Schematische Spurgeometrie im SMYTHE-Modell

Für die Feldverstärkung an der Spurspitze ergibt sich dann in guter Näherung [33]:

$$\frac{E_{max}}{E_0}=\frac{2L/r}{\ln(4L/r)-2} \tag{4}$$

Mit den oben angegebenen Spurabmessungen werden Feldverstärkungen im Bereich 50—570 erreicht. Bei genügend großer makroskopischer Feldstärke E_0 kann die Durchbruchsfeldstärke des Dielektrikums in der Größenordnung MV/cm [34] überschritten werden. Die Folge sind von den Spurspitzen ausgehende elektronische Entladungen, die sich entlang der Feldlinien büschelartig ausbreiten („electrical trees“ Abb. 3). Da die Lauge in die feinen Verästelungen des Entladungsbäumchens eindringt, die nun selbst als Spitzenelektroden wirken, schreitet die Bäumchenbildung schnell voran. Über die Einzelheiten des Zerstörungsprozesses ist wenig bekannt. Verschiedene Hypothesen gehen von gasgefüllten Volumina in den Spurspitzen aus, in denen Elektronen durch die hohen Feldstärken auf Energien bis zu einigen eV beschleunigt werden [29]. Diese Elektronen brechen durch Stöße die C-H-Bindungen des Polymers auf. Außerdem kann durch Spaltung von O_2-Molekülen atomarer Sauerstoff entstehen, der das Material lokal oxidiert.

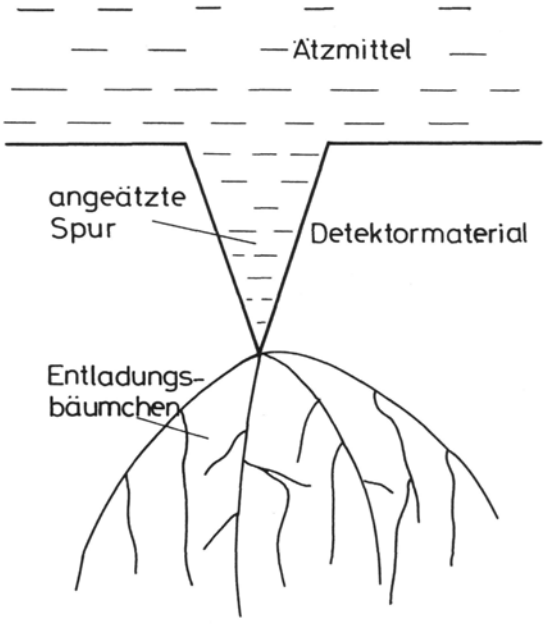


Abb. 3 Kernspur mit Entladungsbäumchen

Die Kernspuren werden durch den ECE-Prozeß in das ungeschädigte Material hinein verlängert und dabei auf Durchmesser bis zu 100 μm vergrößert. Der Einsatz des „treeing“ und die Größe der ECE-Spuren lassen sich durch Wahl von Feldstärke und Frequenz in weiten Grenzen variieren [30]. Dieser Vorteil wird allerdings mit einem vollständigen Verlust der Spurinformation (Länge, Öffhungswinkel, Winkel zur Detektornormalen) erkauft. Daher verbreitete sich das Verfahren vor allem in der Dosimetrie, wo im allgemeinen die Spurenzahl als Maß für die Dosis interessant ist.

Der kritische Winkel für elektrochemisches Ätzen ist kleiner als für chemisches Ätzen [35]. Eine Ursache ist die Abhängigkeit der Feldverstärkung von der Orientierung der Spur, die in erster Näherung durch einen größeren effektiven Krümmungsradius in GL (4) berücksichtigt werden kann.

Große ECE-Spuren schirmen benachbarte latente Spuren vom elektrischen Feld ab. Dies führt zu einem Sättigungsverhalten der Nachweiswahrscheinlichkeit bei hohen Spurendichten [32].

Chemisches und elektrochemisches Ätzen werden oft kombiniert [30]. In der Regel wird das chemische Ätzen dem elektrochemischen als sogenanntes „Vorätzen“ vorangestellt, um eine rauhe Detektoroberfläche zu „polieren“ (Senkung der ECE-Nullrate) oder unerwünschte Spuren (α-Spuren aus Rn-Zerfall) zu entfernen.

4 Das Detektormaterial

Zunächst wurde überprüft, ob die Materialien als Detektor für schnelle Neutronen prinzipiell geeignet sind. Es wurde ein weit verbreitetes Ausweismaterial für die vorliegenden Untersuchungen herausgesucht, welches nach Angaben des Herstellers vor allem aus einem Verbundlaminat PoIyethylen-Polyester besteht. Das neutronenempfindliche Medium ist die äußere Schicht der Kunststoffhülle. Erste Neutronenbestrahlungen (Neutronenquellen s. Anhang II) und anschließende Ätzversuche ergaben den folgenden Schichtaufbau des Hüllmaterials (Abb. 4):

Polyester ≈ 20 μm, neutronensensitiv
Haftvermittler < 1 μm
Polyethylen 130 μm

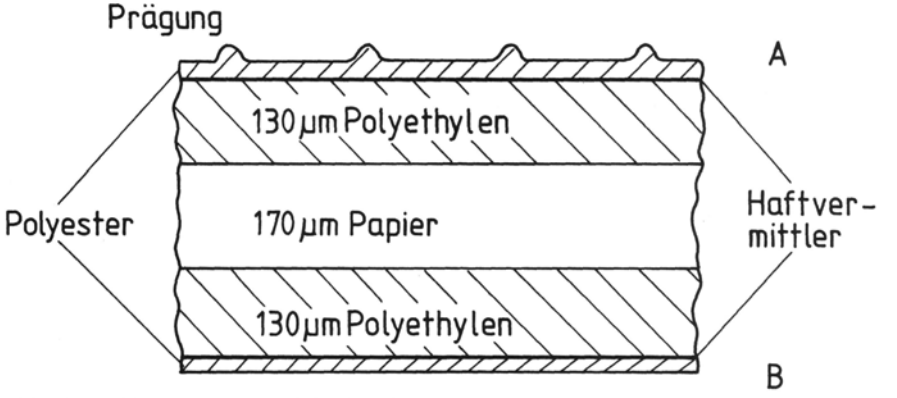


Abb. 4 Aufbau der untersuchten Karten

Die in diesen Untersuchungen verwendeten Ausweiskarten bestehen aus weißem, unbedrucktem faserigem Papier, das unlösbar in eine transparente Folie aus polymerem Kunststoff eingeschweißt ist. Die Folie ist auf einer Seite (A) mit einer Prägung versehen, auf der anderen Seite (B) glatt (Abb. 4). Nach Entfernen eines 2 mm breiten Schweißnahtrandes werden sie in 6 Teile vom Format 35 mm X 33,6 mm geschnitten, die als „Detektoren“ für die experimentellen Untersuchungen Verwendung finden. Das elektrochemische Ätzen erfolgte ausschließlich auf der Seite B, da diese eine höhere Nachweiswahrscheinlichkeit und kleinere Nullrate als die Seite A zeigte, deren Prägung außerdem die Abdichtung im Ätzbad erschwert.

Konzentrierte Natronlauge greift die Polyesterschicht an, die Polyethylenschicht dagegen nicht. Nach längerem Ätzen dringt die Lauge entlang der bis zur Polyethylenschicht durchgeätzten latenten Spuren in die Haftvermittler-Zwischenschicht ein und breitet sich dort großflächig aus. Die Folge ist eine Senkung der Nachweiswahrscheinlichkeit durch Feldabschirmung und schließlich die Ablösung der Polyesterschicht. Dieser Nachteil kann durch geeignete Anpassung der Ätzparameter vermieden werden.

Bemerkenswert ist die Unempfindlichkeit des Kartenmaterials gegenüber Alphastrahlung. α-Teilchen mit Energien von 0.45 MeV bis 3.53 MeV erzeugten keine ätzbaren latenten Spuren. Der REL-Schwellwert des Materials muß folglich größer als 2200 meV cm g^{-1} sein. Damit kommen im wesentlichen nur Kohlenstoff- und Sauerstoffkerne als spurerzeugende Teilchen in Frage. Ein ähnliches Verhalten wurde an Polycarbonat und Polyethylentherephtalat, die beide zur Gruppe der linearen Polyester gehören [34], beobachtet. Alphaspuren ließen sich in diesen Polymeren nur durch spezielle Ätzlösungen entwickeln [47].

Der natürliche Radonzerfall führt daher nicht zu einer Erhöhung der Spurenzahl. Dies vereinfacht die Auswertung und begünstigt einen möglichen Einsatz des Ausweises als Katastrophendosimeter.

5 Auswertung neutronenbestrahlter Detektoren

5.1 Die Apparatur für elektrochemisches Ätzen

Für die Ätzungen wurde eine spezielle Anlage aufgebaut, bestehend aus dem beheizbaren Ätzbad und den elektrischen Versorgungsteilen für Heizung, Hochspannungserzeugung und Rührwerk.

Die aus Edelstahl gefertigte Ätzbadwanne (Abb. 5) hat rechteckigen Grundriß und faßt ca. 5 Liter Ätzmittel. Die Heizung erfolgt durch außen an der Rückseite und am Boden angebrachte Heizdrähte. Die beheizten Flächen sind wärmeisoliert. Die Frontseite des Ätzbades bildet eine 10 mm starke, abschraubbare Edelstahlplatte, die 12 Ätzkammern zur Aufnahme der Detektoren enthält. Die Kammern sind als Vertiefungen von 50 mm Durchmesser und 7 mm Tiefe in einer 4 X 3-Matrix in die Frontplatte eingefräßt. Durch eine Bohrung von 25 mm in der Kammermitte gelangt Lauge zum Detektor. Die rückwärtige Kontaktierung der Detektoren erfolgt über scheibenförmige Elektroden von 50 mm Durchmesser, die in einer Vertiefung Elektrolytlösung aufnehmen können (Abb. 6). Der Elektrolyt (2.5 N NaCl-Lösung) stellt auch bei unebener Oberfläche einen optimalen Kontakt zum Detektor her.

Die Hochspannung wird über Bananensteckerbuchsen an die Elektroden gelegt. Tefloneinsätze in den Ätzkammern sorgen für die elektrische Trennung der Elektroden von der auf Massepotential liegenden Frontplatte. Die laugen- und elektrolytseitige Abdichtung erfolgt durch Silikonringe, die auch von heißer Lauge nicht angegriffen werden. Der Deckel der Ätzwanne enthält Durchführungen für den Temperaturfühler (PT-100 Platinwiderstand in Edelstahlkapsel) und die Achse des elektromotorisch angetriebenen Rührers. Durch eine weitere, verschraubbare Öffnung kann ein Kontrollthermometer eingeführt werden.

Das Ätzbad ist um 90° drehbar in einer Halterung gelagert. Während der Aufheizphase liegt die Ätzkammerseite waagerecht. In diesem Zustand erfolgt auch der Detektorwechsel. Nach dem Kippen des Bades beginnt der Ätzvorgang gleich mit der richtig temperierten Lauge. Die Laugentemperatur ist stufenlos von Zimmertemperatur bis 90°C wählbar, die elektronische Regelung hält den eingestellten Wert auf ±0.1°C konstant.

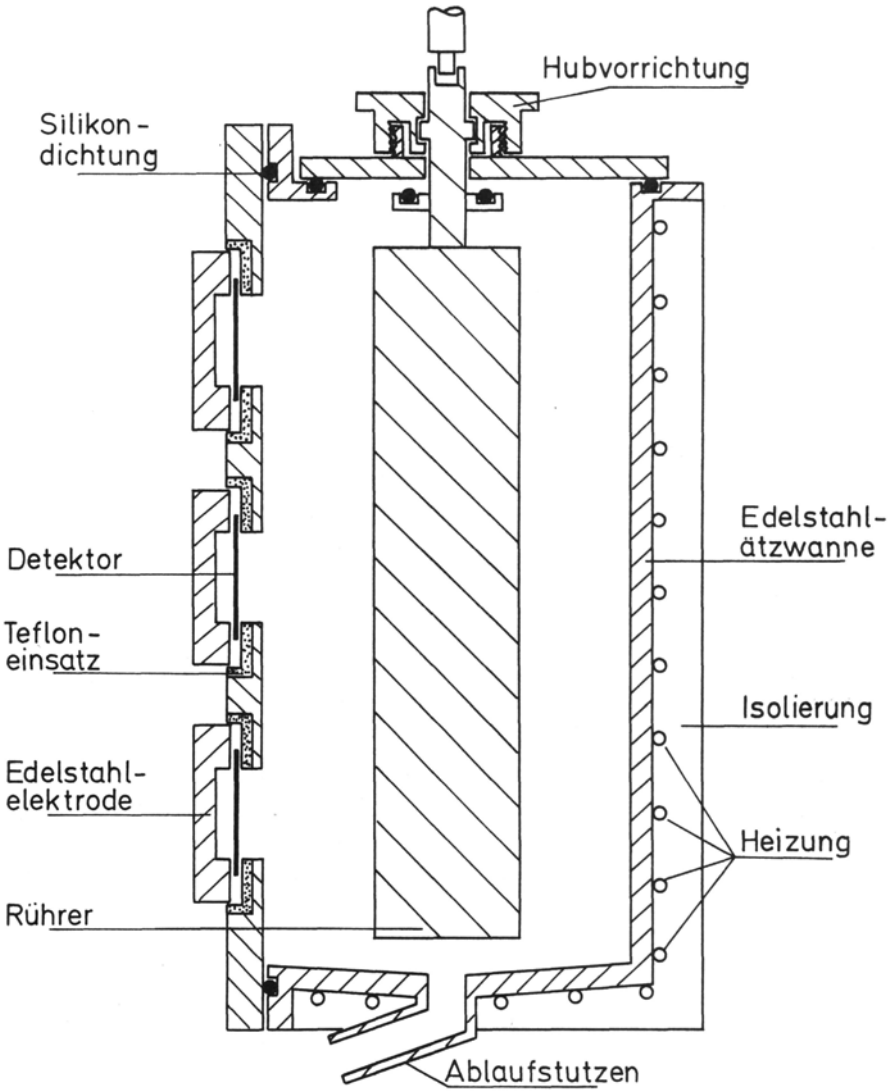


Abb. 5 Prinzipieller Aufbau des Ätzbades

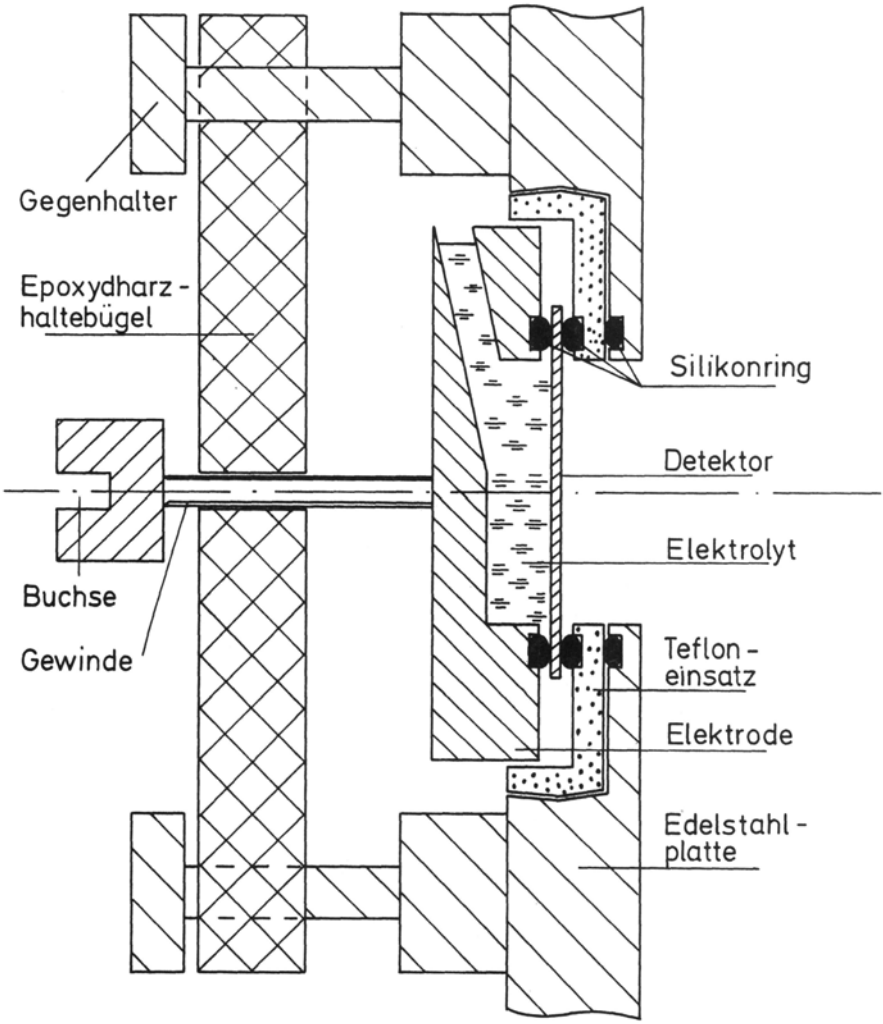


Abb. 6 Ätzkammer mit Detektor und Elektrode im Detail

Die Hochspannung für den ECE-Prozeß erzeugt ein Gegentakt-Rechteckgenerator mit Ausgangstransformator. Die Frequenz ist von 16 Hz bis 2.1 kHz einstellbar. Die Sättigung des Transformators bei niedrigen Frequenzen sowie der induktive Widerstand der Sekundärspule und die kapazitive Last des angeschlossenen Ätzbades bei hohen Frequenzen schränken den Bereich, in dem die maximale Spitzenspannung zur Verfügung steht, auf 80—700 Hz ein. Die Hochspannung wird über 10 mA Feinsicherungen zu den einzelnen Elektroden geführt. Die Ausgangsspannung wird über einen Spannungsteiler im Verhältnis 1:1000 abgegriffen und gleichgerichtet. Ein y-t-Schreiber zeichnet den Spannungsverlauf während der Ätzzeit auf, um Kurzschlüsse, Netzausfälle oder andere Unregelmäßigkeiten zu dokumentieren.

5.2 Aussehen und Größe der ECE-Spuren

Die elektrochemisch geätzten Spuren zeigen unter dem Mikroskop runde bis ovale Formen mit unregelmäßigen Rändern. Da ätzbare latente Spuren nur in der 20 μm dicken Oberflächenschicht gebildet werden (Kap. 4), ist der maximale Spurdurchmesser auf ca. 40 μm begrenzt. Von oben betrachtet ist das Entladungsbäumchen der Spur als dunkler Kranz zu erkennen, der einen hellen Zentralbereich umgibt. Dort wurde das Material entlang der latenten Spur in die Tiefe gehend abgetragen. Der Anteil dieses ausgeätzten Bereiches an der Gesamtfläche der Spur wird durch die Laugenparameter bestimmt (Kap. 6.1.2).

5.3 *Auszählen geätzter Detektoren*

5.3.1 Manuelle Zählung

Zur manuellen Zählung der Kernspuren wurde ein Leitz-Mikroskop „Ortholux“ eingesetzt. Die Detektoren wurden mit einer Lochmaske bedeckt, die 100 in einer 10 X 10-Matrix angeordnete Bohrungen von 1.1 mm Durchmesser enthielt. Die Kernspuren innerhalb der so definierten Zählfelder wurden bei lOOfacher Vergrößerung gezählt. Lag die Spurendichte über 100 Spuren pro Feld, wurde eine 250fache Vergrößerung gewählt, wobei das Zählfeld dann durch das Okularsehfeld definiert war. Die Maskentechnik erlaubte eine gleichmäßige Bedeckung der geätzten Fläche mit Zählfeldern und verhinderte eine Mehrfachzählung von Spuren.

Zur Auswertung der winkelbestrahlten Detektoren (Kap. 6.2) wurde eine Maske mit einer 12 X 10-Lochmatrix (Lochdurchmesser 1.0 mm) verwendet. Der Lochzeilenabstand von 1.4 mm entsprach bei der gewählten Bestrahlungsgeometrie (Kap. 6.2.1) einer Winkelauflösung von ca. 8°, so daß die 12 Lochzeilen den Winkelbereich von senkrechtem bis streifendem Einfall abdeckten.

Die durch die Lochmaske definierte Auswertefläche betrug in beiden Fällen ca. 1 cm^2, das sind 20% der geätzten Detektorfläche.

5.3.2 Automatische Zählung

Für die automatische Kernspurzählung wurde das Partikelanalysegerät „Autoscope P“ der Firma Leitz eingesetzt. Das System besteht aus einem Mikroskop mit Scanning-Objekttisch und aufgesetzter Vidicon-Röhrenkamera sowie einem Steuer- und Auswerterechner (CPU 68000), der sich zusammen mit der Leistungselektronik (Lampen- und Schrittmotorsteuerung) in einem separaten Gehäuse befindet. Der Benutzer stellt die Meßparameter am Terminal über einen menuegesteuerten Dialog ein. Analyseergebnisse können auf Monitor, Drucker oder Plotter ausgegeben werden. Zur Datenspeicherung stehen eine Festplatte (15 MByte) und ein Diskettenlaufwerk zur Verfügung.

Das von der Kamera gelieferte Bild wird digitalisiert, wobei jedem Bildpunkt (Pixel) ein 8-bit Binärwert (Grauwert) zugeordnet wird. Jede Gruppe von Pixeln, deren Grauwerte in einem vom Benutzer vorgegebenen Fenster liegen, wird als Partikel erkannt. Verschiedene Bildanalysefunktionen erlauben eine „Reinigung“ des Bildes durch Eliminierung von Einzelpixeln, Unterbrechung von Brücken zwischen benachbarten Pixelgruppen oder Füllen von Löchern.

Der Detektor wird durch Bewegung des Scanningtisches mäanderförmig abgerastert, als Meßende-Kriterium kann die Partikel- oder Zählfeldzahl gewählt werden. Die Kernspuren wurden bei 128facher Vergrößerung gezählt, die ausgewertete Fläche lag zwischen 0.8 cm^2 und 1.2 cm^2. Außer der Anzahl der Kernspuren ermittelt der Rechner auch Spurgrößen-Verteilungsfunktionen. Diese zusätzliche Information ist für die Dosimetrie von untergeordneter Bedeutung und wurde in den vorliegenden Untersuchungen nicht verwendet.

5A Berechnung der Nachweiswahrscheinlichkeit

Die Flächendichte S neutroneninduzierter Spuren (im folgenden als „Spurenrate“ bezeichnet) ergibt sich aus der gezählten Spurenzahl Z pro Flächeneinheit durch Abzug der entsprechend normierten Spurenzahl N auf unbestrahlten Detektoren („Nullrate“). Die Nachweiswahrscheinlichkeit £ wird als das Verhältnis von Spurenrate und Fluenz definiert:

$$\epsilon = \frac{S}{F} = \frac{Z-N}{F} \qquad (5)$$

Diese Größe ist eigentlich dimensionslos. Zur Verdeutlichung wird deshalb der Zahlenwert durch den Zusatz „Sp/n“ (Spuren pro Neutron) ergänzt.

Mit Hilfe von Fluenz-Äquivalentdosis-Konversionsfaktoren, die von der Neutronenenergie abhängen, läßt sich die Spurenrate auch auf die Äquivalentdosis beziehen:

$$\epsilon' = \frac{\epsilon}{h(E_n)} = \frac{S}{F \cdot h(E_n)} \tag{6}$$

ϵ': Nachweiswahrscheinlichkeit [$Sp \cdot cm^{-2} Sv^{-1}$]
$h(E_n)$: Fluenz-Äquivalentdosis-Konversionsfaktor [$Sv \cdot cm^2$]
E_n: Neutronenenergie

Diese Faktoren werden aus Rechnungen zur Tiefendosisverteilung in neutronenbestrahlten Phantomen gewonnen. Die Zahlenwerte in Tabelle 1 sind aus [48] entnommen und gelten für die Äquivalentdosis in einem Zylinderphantom aus gewebeäquivalentem Material von 30 cm Durchmesser in 1 cm Tiefe. Die Faktoren für die Nuklidquellen sind in [49] zu finden. Aufgrund neuer Berechnungen wird zur Zeit über eine Erhöhung dieser Faktoren diskutiert.

Bei großer Schwankung der Nullrate lassen sich kleine Dosen nicht mehr eindeutig identifizieren. Die untere Nachweisgrenze wird definiert als die der 3fachen Standardabweichung der Nullrate entsprechende Äquivalentdosis (3σ-Kriterium):

$$D_{min} = \frac{3\sigma_N}{\epsilon'} \tag{7}$$

D_{min}: untere Nachweisgrenze [Sv]
σ_N: Standardabweichung der Nullrate [$Sp \cdot cm^{-2}$]

Tabelle 1: Fluenz-Äquivalentdosis-Konversionsfaktoren

E_n [MeV]	$h(E_n)$ [$pSv \cdot cm^2$]
0.1	59.9
0.5	199
1.0	314
1.2	296
2.5	313
5.0	370
10.0	415
14.7	536
Cf-252	333
Am-Be	381

6 Experimentelle Untersuchungen

Ziel der vorliegenden Untersuchungen war
— die Optimierung des elektrochemischen Ätzprozesses
— die Ermittlung der Empfindlichkeit (response)
— die Bestimmung von Energie- und Winkelabhängigkeit
— die Betrachtung von Störeinflüssen wie Meßwertschwund, Verhalten der Nullrate, Trageverhalten des Ausweises.

6.1 Neutronenbestrahlungen mit Cf-252 Quelle

Für die Bestrahlungen mit der Cf-252 Quelle wurde der Bestrahlungsaufbau der Abb. 7 verwendet. In eine ringförmige Halterung aus Messing können bis zu neun Detektoren stehend eingesetzt werden. Die Cf-252 Quelle, die sich in einem Aluminiumbecher mit Schraubverschluß befindet, wurde so plaziert, daß die Mittelpunkte von Quelle und Detektoren in einem Abstand von 50 mm in einer Ebene lagen. Die Bestrahlung erfolgte in einem leeren Raum der Größe 9.4 x 6.1 x 3.7 m^3. Der Aufbau war auf einem Stativ in der Raummitte angebracht, um den Anteil der von den Wänden rückgesteuerten Neutronen so weit wie möglich zu verringern. Aufgrund der Daten aus [50] sollte dieser Anteil bei der hier gewählten Bestrahlungsgeometrie deutlich unter 10% liegen.

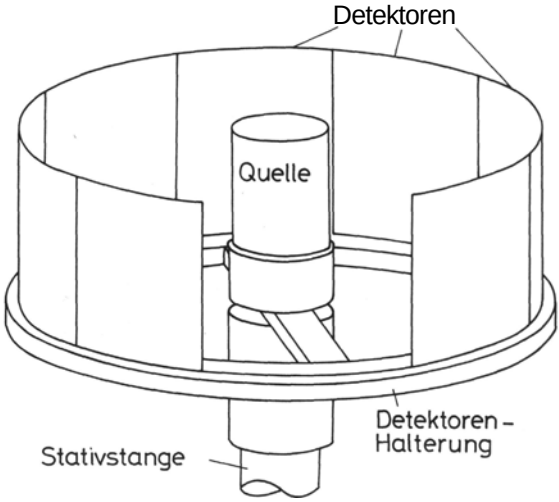


Abb. 7 Aufbau für Bestrahlungen mit der Cf-Quelle

Der geringe Bestrahlungsabstand hat Abweichungen der Abstandsabhängigkeit der Fluenz vom l/r^2-Gesetz einer Punktquelle zur Folge. Für die Zylindergeometrie der Cf-Quele ergibt sich eine Differenz von unter 8 % zwischen tatsächlicher und mit dem l/r^2-Gesetz berechneter Fluenz, wobei dieses immer den kleineren Wert liefert. Diese Unterschätzung der Fluenz ist für die Untersuchungen tolerierbar.

Die Zählraten wurden aus vier bestrahlten, die Nullraten aus zwei unbestrahlten Detektoren pro Meßpunkt gewonnen. Damit wird eine akzeptable statistische Sicherheit der Spurenrate erreicht.

6.Ll Laugeneinfluß

Neutroneninduzierte Spuren lassen sich durch elektrochemisches Ätzen mit folgenden Parametern sichtbar machen:

Laugentemperatur:	70°C
Feldstärke:	110 kV/cm
Frequenz:	300 Hz
Vorätzdauer:	0.5 h
ECE-Dauer:	1 h

Mit diesen „Standardparametern“ ergibt sich beim Ätzen in 5N Natronlauge, einem für elektrochemische Ätzungen üblichen Wert, eine Nachweiswahrscheinlichkeit von 7 10^{-7} Sp/n bzw. 2100 Sp $cm^{-2}Sv^{-1}$. Dieser Wert wird jedoch nicht mit frisch angesetzter Lauge erreicht (Kap. 6.1.2.2).

6.1.1.1 Konzentration

Zur Ätzparameteroptimierung wurde die Abhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit von der Laugenkonzentration untersucht. Die Detektoren wurden in 2, 4, 5, 6 und 8 normaler und 70°C heißer Natronlauge ein- bzw. zweistündig elektrochemisch geätzt. Die Normalität wurde durch Titrieren auf 3 % genau eingestellt. In Abb. 8 ist die Nachweiswahrscheinlichkeit gegen die Laugenkonzentration (Normalität) aufgetragen. Die Kurve zeigt für beide Ätzzeiten einen Anstieg bis zu einem breiten Maximum bei 4.5—5.0 normaler Lauge. Einstündiges Ätzen in 5N Lauge ergab eine Nachweiswahrscheinlichkeit von 1230 Sp-$Cm^{-2}Sv^{-1}$, die nach einer Ätzzeit von 2 h auf 1762 Sp $Cm^{-2}Sv^{-1}$ ansteigt. Bei höheren Konzentrationen fällt die Nachweiswahrscheinlichkeit ab, nach zweistündigem Ätzen in 8N Lauge bis unter den mit 2N Lauge erreichten Wert.

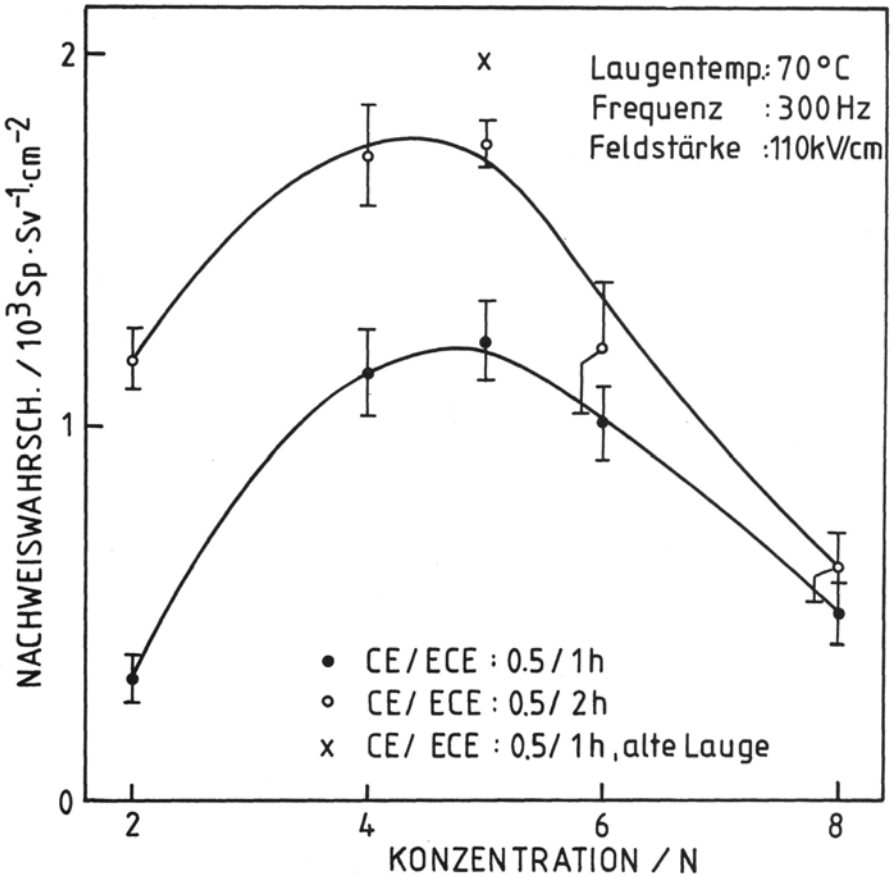


Abb. 8 Abhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit von der Laugenkonzentration

Mit steigender Konzentration der Lauge nimmt die Oberflächenätzgeschwindigkeit v_B zu. Während der Ätzzeit t wird eine Schicht der Dicke $d=v_B\ t$ abgetragen und die in diesem Volumen enthaltenen latenten Spuren dem „treeing“ unterworfen. Die Anzahl der entwickelten Spuren steigt also zunächst mit v_B. Die Abhängigkeit der Oberflächenätzgeschwindigkeit von der Laugenkonzentration c wird häufig durch ein Potenzgesetz beschrieben [51]. Zusammen mit der ARRHENIUS-Beziehung Gl. (3) ergibt sich dann für v_B:

$$v_B = a \cdot c^n \cdot \exp(-E_a/kT);\ n \approx 1.5,\ a = \text{const.} \tag{8}$$

Die geringe Zahl der Meßpunkte auf dem ansteigenden Teil der Kurve läßt eine Überprüfung dieser Abhängigkeit nicht zu.

Die Abnahme der Nachweiswahrscheinlichkeit für Laugenkonzentrationen über 5 normal hat im wesentlichen zwei Gründe. Eine Untersuchung zur Vorätzdauer ergab ein Maximum der Nachweiswahrscheinlichkeit für etwa halbstündiges Vorätzen. Dies läßt auf eine dünne Schicht größerer Dichte nahe der Oberfläche schließen, in der eine größere Anzahl Rückstoßkerne gebildet wird. Steigt nun die Laugenkonzentration und damit die Oberflächenätzgeschwindigkeit, so wird mit dem Vorätzen diese Schicht weitgehend abgetragen und so die Nachweiswahrscheinlichkeit verringert.

Der zweite Grund liegt im Schichtaufbau der Karten (Kap. 4). In hochkonzentrierter Lauge werden die Kernspuren schnell bis zur Polyethylenschicht durchgeätzt. Nach dem Eindringen der Lauge in die Zwischenschicht wird ein Teil der latenten Spuren durch Feldabschirmung vom „treeing“ ausgeschlossen. Dieser Effekt trat besonders bei den in 8N Lauge geätzten Detektoren in Erscheinung. Die Entladungsbäumchen wurden hier zu großen Löchern in der Polyesterschicht ausgeätzt, die sich stellenweise vom Polyethylenträger abgelöst hatte. Diese „Spuren“ konnten nicht mehr automatisch gezählt werden.

Die Nullrate zeigte bei einstündigem Ätzen einen monotonen Anstieg von 2 Sp cm^{-2} für 2N Lauge bis zu einem Sättigungswert von 61 Sp cm^{-2} für 6N und 8N Lauge. Zweistündiges Ätzen erhöhte die Nullrate auf 25 Sp cm^{-2} (2N) bzw. 155 Sp cm^{-2} (6N, 8N). Ursache sind offenbar im abgetragenen Volumen enthaltene Defekte des Materials, an denen die Bäumchenbildung einsetzt.

Aufgrund dieser Ergebnisse wird das einstündige elektrochemische Ätzen in 5 normaler Lauge beibehalten. Die Forderung der Katastrophendosimetrie nach kurzen Auswertezeiten spricht gegen eine Verlängerung der Ätzzeit trotz der damit verbundenen größeren Nachweiswahrscheinlichkeit. Längere Auswertezeiten müssen bereits für Detektoren mit hoher Nullrate in Kauf genommen werden (Kap. 6.3).

6.1.1.2 Ätzabbauprodukte

Die Untersuchungen zur Konzentrationsabhängigkeit wurden mit frisch angesetzter Lauge durchgeführt. Für die eine Stunde lang in 5N Lauge geätzten Detektoren lag die Nachweiswahrscheinlichkeit überraschenderweise 40% unterhalb der beim Ätzen unter Standardbedingungen eigentlich erwarteten von 2130 Sp $Cm^{-2}Sv^{-1}$. Selbst nach zweistündigem Ätzen wurde dieser Wert nicht erreicht (in Abb. 8 durch X markiert). Die Spurenrate-Dosis-Messung (Kap. 6.1.1) wurde mit derselben Lauge durchgeführt, die auch bei den anderen Untersuchungen verwendet worden war. Eine leichte Grünfärbung dieser „alten Lauge“ deutet auf eine Anreicherung mit Ätzabbauprodukten hin, deren Anwesenheit sich offenbar günstig auf die Nachweiswahrscheinlichkeit auswirkt. Über die Natur der beim

Ätzen entstandenen Substanzen konnten keine Einzelheiten in Erfahrung gebracht werden, da die chemische Zusammensetzung des Detektormaterials nicht bekannt war. Aus Untersuchungen an Polycarbonaten sind Einflüsse der Ätzabbauprodukte auf die Oberflächenätzgeschwindigkeit bekannt. Für Lexan wurde eine sprunghafte Zunahme von v_B an der Löslichkeitsgrenze der Ätzprodukte festgestellt. In UV-Absorptionsmessungen wurde das Lexan-Monomer Bisphenol A als Hauptbestandteil der Ätzprodukte nachgewiesen [52].

Die in alter und neuer Lauge geätzten Detektoren zeigten auch Unterschiede in der Oberflächenbeschaffenheit und dem Aussehen der Spuren. Die ursprünglich glänzende Oberfläche der Ausweiskarte nahm nach dem Ätzen in neuer Lauge ein mattes Aussehen an, während die in alter Lauge geätzten Detektoren eine immer noch glänzende Oberfläche zeigten. Das ausgeätzte Zentrum der Kernspur wurde beim Ätzen in neuer Lauge vergrößert (Kap. 5.2), was zu erheblichen Schwierigkeiten bei der automatischen Kernspurzählung führte. Das Bildanalysesystem erkannte den ECE-Kranz der Spur nur noch bruchstückhaft und zählte daher mehere Partikel pro Spur.

Diese Ergebnisse lassen darauf schließen, daß die Oberflächenätzgeschwindigkeit mit zunehmender Konzentration der Ätzprodukte abnimmt. Ursache könnte eine auf der Detektoroberfläche gebildete Schicht aus Ätzprodukten sein, die den Zutritt der Lauge zum Detektor erschwert [53, 25]. Da die Lauge innerhalb der Spurkanäle mit Ätzprodukten gesättigt ist, sollte sich die Spurätzgeschwindigkeit v_B nicht ändern. Als Folge stellt sich ein größeres Ätzratenverhältnis v_T/v_B ein. Nach Gl. (1) bilden sich Ätzkegel mit kleinerem Öffnungswinkel, die in der Regel auch einen kleineren Krümmungsradius aufweisen. Nach Gl. (4) verringert sich dann die Feldverstärkung mit der Konsequenz, daß an vielen Spuren keine Bäumchenbildung einsetzt.

Die Standard-Vorätzdauer von 0.5 h stellt für das Ätzen in neuer Lauge nicht mehr das Optimum dar. Der Grund liegt auch hier im beschleunigten Abtrag der neutronensensitiven Schicht während des Vorätzens. Versuchsweise wurde deshalb die Vorätzdauer auf 0.25 h verkürzt und die Gesamtätzzeit von 1.5 h durch Ausdehnen der ECE-Phase beibehalten. Dies ergab eine Steigerung der Nachweiswahrscheinlichkeit um 16% auf 1435 Sp $Cm^{-2}Sv^{-1}$. Das Verkürzen der Vorätzzeit wirkt der durch den oben skizzierten Mechanismus bewirkten Abnahme der Nachweiswahrscheinlichkeit nur teilweise entgegen.

Um reproduzierbare Ergebnisse zu erhalten, wurde bei den weiteren Untersuchungen grundsätzlich frische Lauge verwendet. Für Reihenuntersuchungen ist dies aus Kostengründen nur bei kleinen Ätzbadvolumina vertretbar. Denkbar wäre auch eine künstliche Alterung der Lauge, z.B.

durch Zusatz eines geeigneten Monomers. Da die chemische Zusammensetzung der Polyesterschicht nicht bekannt war, schied diese Möglichkeit aus. Außerdem ist die Verwendung künstlich gealterter Lauge nicht unproblematisch, da sich die Laugenqualität durch verschiedene Einflüsse, wie Reaktionen des zugesetzten Monomers mit den Ätzprodukten oder Oxidation durch Luftsauerstoff, in unvorhergesehener Weise ändern kann.

6.1.2 Dosisabhängigkeit der Spurenrate

Die Response eines Dosimeters gibt an, mit welcher Empfindlichkeit eine Dosis nachgewiesen werden kann.

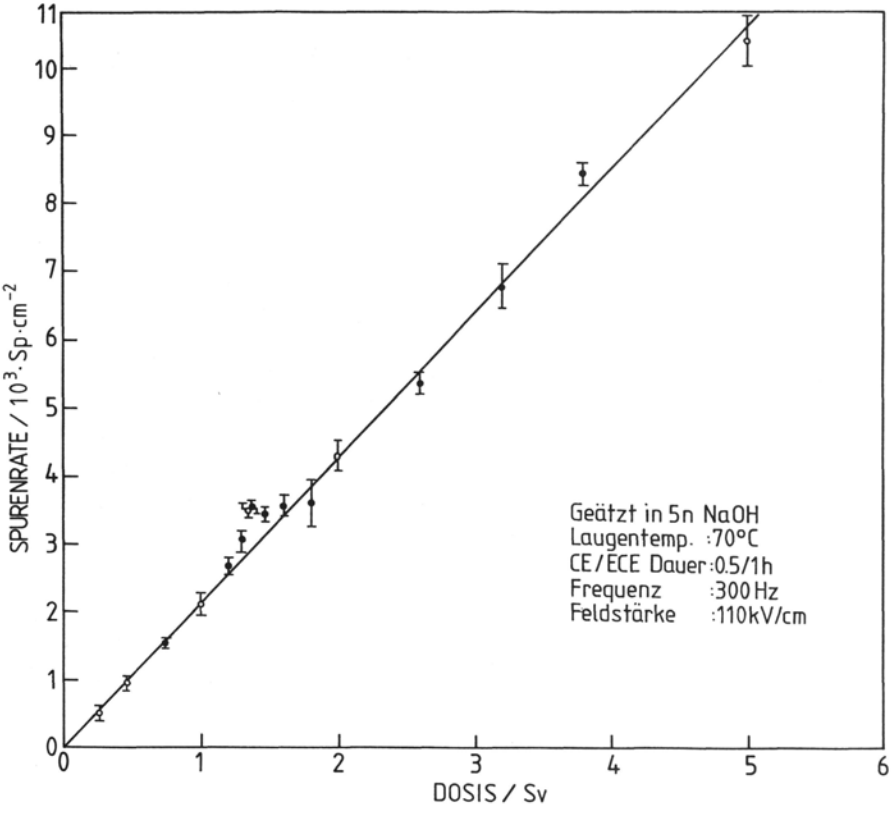


Abb. 9 Dosisabhängigkeit der Spurenrate

Die Kurve zeigt einen linearen Verlauf. Die mittlere Nachweiswahrscheinlichkeit ergibt sich aus der Steigung der Regressionsgeraden und beträgt 2130 Sp $Cm^{-2}Sv^{-1}$ mit einem Fehler von ±1.6%. Die Nullrate beträgt im Mittel 107 Sp-cm^{-2} bei einer Standardabweichung von 36 Sp cm^{-2}.

Daraus errechnet sich nach Gl. 7 eine untere Nachweisgrenze von 5 cSv. Aus der mittleren Standardabweichung der Spurenrate von 173 Sp cm^{-2} folgt eine Unsicherheit der Dosis von 8 cSv.

Bei 1.36 Sv ist eine erhöhte Nachweiswahrscheinlichkeit festzustellen, die nicht mit einer normalen Schwankung der Spurenrate zu erklären ist. Die Abweichungen betragen hier bis zu 22%. Die Ursache für dieses ungewöhnliche Verhalten konnte nicht geklärt werden. Eine spurendichteabhängige Nachweiswahrscheinlichkeit wird beim elektrochemischen Ätzen normalerweise nur als Sättigung bei entsprechend hohen Spurdichten beobachtet. Diese setzt jedoch erst jenseits von 5 Sv ein (s.u.). Durch die Abweichung vom linearen Verlauf lassen sich Dosen zwischen 1.3 und 1.6 Sv nicht mehr eindeutig bestimmen. Für die Katastrophendosimetrie ist eine Unsicherheit der Dosis von 30 cSv jedoch tolerierbar.

Für hohe Neutronenfluenzen muß sich ein Sättigungsverhalten der Spurenrate bemerkbar machen, da die mit Lauge gefüllten Entladungsbäumchen in zunehmendem Maße benachbarte latente Spuren vom elektrischen Feld abschirmen. Da im Dosisbereich bis 5 Sv kein durch diesen Effekt verursachter Rückgang der Spurenrate festzustellen war, wurden zwei Detektoren mit 14.5 Sv bestrahlt. Die Spurenrate betrug 25300 Sp cm^{-2} und lag damit 18% unterhalb der extrapolierten Regressionsgeraden (Abb. 10). Läßt man nur 5% Abweichung von der Geraden zu, können Sättigungseffekte für Dosen bis 9 Sv vernachlässigt werden. Der für die Katastrophendosimetrie interessante Bereich wird damit vollständig abgedeckt, ohne daß eine Neueinstellung der Ätzparameter auf eine kleinere Nachweiswahrscheinlichkeit notwendig wäre.

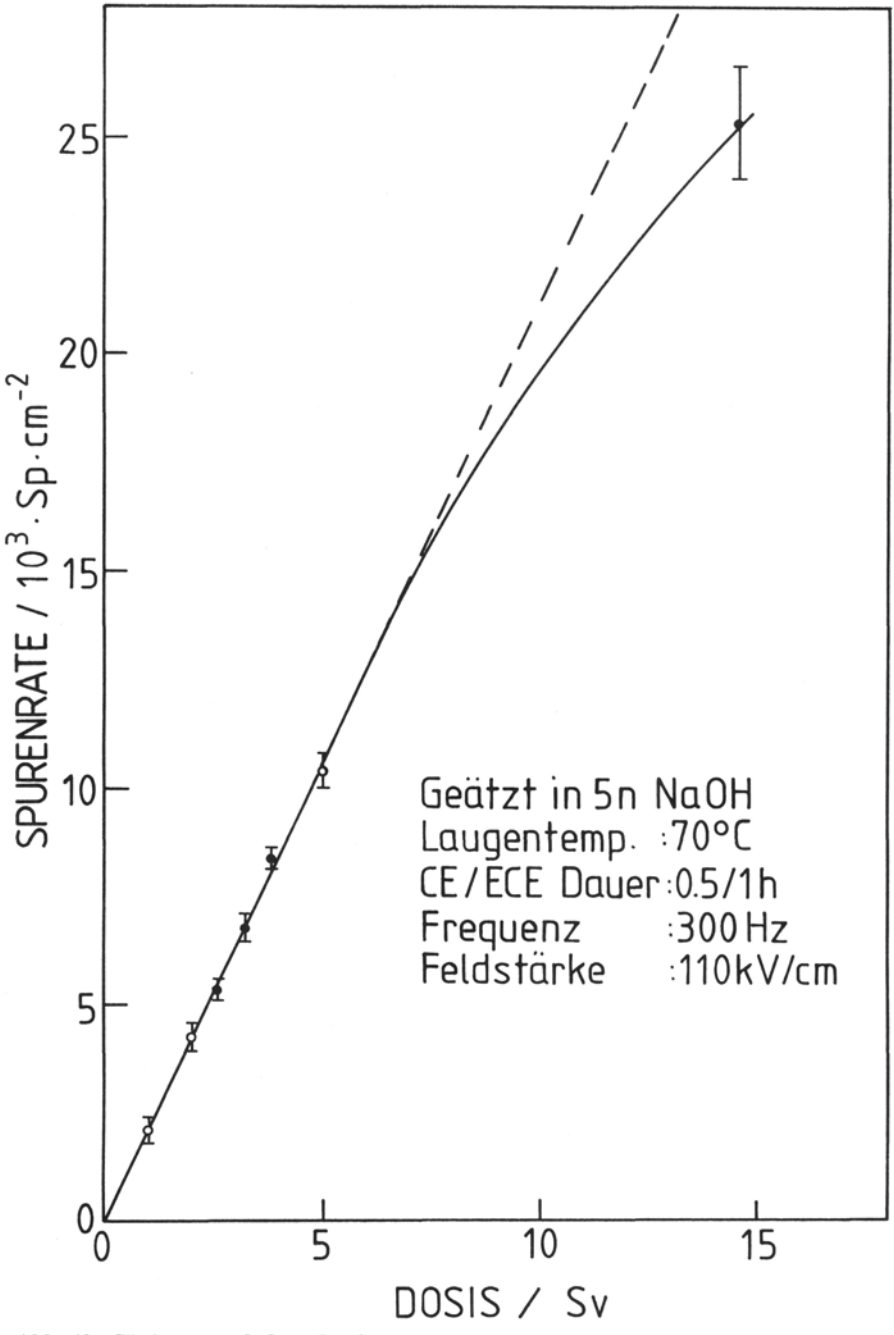


Abb. 10 Sättigungsverhalten der Spurenrate

6.13 Fading

Der in einem Kernspurdetektor durch geladene Teilchen hervorgerufene Strahlenschaden kann während einer Lagerung partiell ausheilen. Dadurch verringert sich die Anzahl der ätzbaren latenten Spuren, ein Vorgang, der als „Fading“ bezeichnet wird. Die Verlustrate der Spuren wird neben anderen Parametern wesentlich von der Temperatur bestimmt. Höhere Temperaturen beschleunigen Diffusionsprozesse im geschädigten Material, die zu einer vermehrten Rekombination freier Radikale und zur Schließung gebrochener Molekülketten führen.

Im Hinblick auf einen möglichen Einsatz der Ausweiskarte als Katastrophendosimeter wurde das Fading-Verhalten des Detektormaterials für die Temperaturen 25°C und 50°C untersucht. Da die Karte normalerweise am Körper getragen wird, sind höhere Temperaturen nicht zu erwarten. Für Polycarbonate liegen im Temperaturbereich bis 50°C sehr unterschiedliche Ergebnisse vor. An Makrofol E, das über einen Zeitraum von 40 Tagen bei 50°C und verschiedenen Luftfeuchtigkeiten gelagert worden war, zeigte sich kein statistisch signifikantes Fading von Alpha- und neutroneninduzierten Spuren [54]. Dagegen wurde ein Verlust von 25 % in der Zahl der Fe-Spuren in Lexan beobachtet, das eine Woche lang in trockener Luft bei 50^0C gelagert worden war [55].

Die für die Katastrophendosimetrie interessante Lagerzeit beträgt etwa eine Woche. Der Untersuchungszeitraum wurde jedoch soweit ausgedehnt, bis keine weitere Abnahme der Spurenrate zu verzeichnen war. Die Lagerzeiten betrugen im einzelnen: 3, 8 und 16 Tage für 25°C und 3, 6, 13 und 24 Tage für 50°C Lagertemperatur. Eine Stunde nach Ende der Bestrahlung geätzte Detektoren dienten als Referenzdetektoren. Die Detektoren wurden in einer Temperanlage in Zimmerluft gelagert. Die Temperatur wurde elektronisch geregelt. Die Abweichungen vom Sollwert blieben während der gesamten Lagerzeit unter 0.5^0C.

In Abb. 11 ist die relative Spurenrate gegen die Lagerzeit für die zwei Lagertemperaturen aufgetragen. Bezugswert ist die Spurenrate der Referenzdetektoren von 1672 Sp-cm^{-2}, entsprechend einer Nachweiswahrscheinlichkeit von 1435 Sp $Cm^{-2}Sv^{-1}$. Die anfängliche Verlustrate liegt für beide Temperaturen bei etwa 40 Sp $cm^{-2}Sv^{-1}$. Nach ungefähr 8 (13) Tagen hat sich die Spurenzahl der bei 25 (50)°C gelagerten Detektoren um 17 (30)% verringert und bleibt danach bis zur maximalen Lagerzeit konstant. Eine statistisch gesicherte Änderung der Nullrate konnte nicht festgestellt werden. Vielmehr schwankte die Nullrate unkorreliert zur Lagerzeit zwischen 13 Sp cm^{-2} und 94 Sp cm^{-2}.

Eine als Katastrophendosimeter eingesetzte Ausweiskarte wird wahrscheinlich nicht länger als eine Woche gelagert. Für diesen Zeitraum kann das Fading pauschal mit einer Verlustrate von 3 % der Spurenzahl pro Tag berücksichtigt werden.

Eine qualitative Erklärung des zeitlichen Verlaufs der Spurenverlustrate geht von der Beobachtung aus, daß der Gesamtverlust der Spuren offenbar in enger Beziehung zur Temperatur steht. In der Anfangsphase des Fading

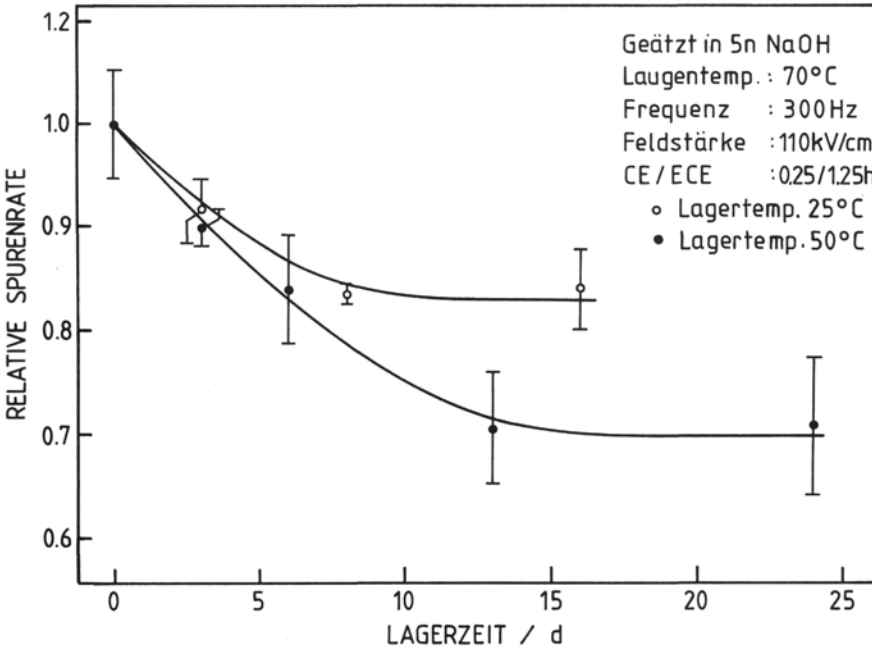


Abb. 11 Zeitliche Entwicklung der relativen Spurenrate für zwei Lagertemperaturen

heilen die durch geringe Materialschädigung charakterisierten latenten Spuren aus, die von niederenergetischen, nach Gl. (20) unter großen Winkeln zur Neutroneneinfallsrichtung emittierten Rückstoßkernen erzeugt wurden. Die Ausheilrate dieser Spuren wird nur wenig von der Temperatur beeinflußt. Mit zunehmender Lagerzeit erhöht sich der Anteil der latenten Spuren, für deren Reparatur eine größere Aktivierungsenergie erforderlich ist. Die Spurenrate nimmt langsamer ab und bleibt schließlich konstant. Der Anteil der latenten Spuren, die noch ausgeheilt werden können, nimmt mit der Temperatur zu. Die Frage nach dem funktionalen Zusammenhang zwischen dem Gesamtverlust der Spuren und der Lagertemperatur kann nur durch weitere Messungen bei verschiedenen Temperaturen beantwortet werden.

6.2 Energie- und Winkelabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit

Die Qualität eines Dosimeters wird entscheidend von der Energie- und Winkelabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit bestimmt. Ein als

Katastrophendosimeter eingesetzter Kernspurdetektor sollte die bei der Explosion einer Fusionswaffe freigesetzten schnellen Neutronen im Energiebereich 1 MeV-14 MeV nachweisen können. Sie liefern neben dem Anteil < 1 MeV und dem Gamma-Anteil den größten Beitrag zur Initialstrahlenwirkung in lebendem Gewebe [56]. Die Strahlung einer in 100 m Höhe explodierenden 1 kT TNT Waffe ist bis zu einer Entfernung von etwa 250 m radial gerichtet [56]. In größerer Entfernung wird das Strahlungsfeld durch die Streuung der Neutronen in Luft und Erdboden annähernd isotrop. Für die Dosisbestimmung ist dies von Vorteil, da eine starke Winkelabhängigkeit des Dosimeters in einem gerichteten Strahlungsfeld zu einer Fehlschätzung der Dosis führen würde.

6.2.1 Bestrahlung und Auswertung

Die Energie- und Winkelabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit wurde mit monoenergetischen und Am-Be Neutronen untersucht. Die Ausweiskarten sind so flexibel, daß sie in gebogenem Zustand bestrahlt werden konnten. Einem 61 mm x 35 mm großen Detektor wurde von zwei 40 mm langen, koaxial angeordneten Aluminiumröhren eine genau kreisförmige Krümmung gegeben. Der Krümmungsradius von 9.5 mm wurde so gewählt, daß die später geätzte Detektorfläche den Winkelbereich 0° bis ~ 85°, entsprechend senkrechtem und streifendem Neutroneneinfall, erfaßt. Abb. 12 zeigt schematisch die Anordnung. Nach der Bestrahlung wurde der Detektor auf das für die Ätzkammer passende Format geschnitten. Die Kernspuren wurden mit einer 12 X 10 Lochmaske unter dem Mikroskop gezählt (Kap. 5.3.1). Der Abstand von einer auf dem Detektor angebrachten Markierung für den senkrechten Neutroneneinfall ist eindeutig mit dem Neutroneneinfallswinkel (relativ zur Detektornormalen) korreliert. Der Lochzeilenabstand von 1.4 mm entsprach einer Winkelauflösung von ca. 8°. Ungenauigkeiten bei der Justierung des Detektors in der Halterung und der Lochmaske auf dem Detektor ergaben zusammen einen Winkelfehler von maximal 3°. Die durch ein Loch definierte Zählfläche überdeckte einen Winkelbereich von etwa 5°. Die Nachweiswahrscheinlichkeit wurde in Abhängigkeit der den Lochmitten zugeordneten Winkel ermittelt, indem der Mittelwert der Spurenrate aus den zehn Zählfeldern je Lochzeile bestimmt wurde. Die Neutronenfluenz, die nach Gleichung (5) bzw. (6) in die Nachweiswahrscheinlichkeit eingeht, muß wegen des geringen Bestrahlungsabstandes von ca. 12 cm für jeden Winkel nach dem $1/r^2$-Gesetz berechnet werden.

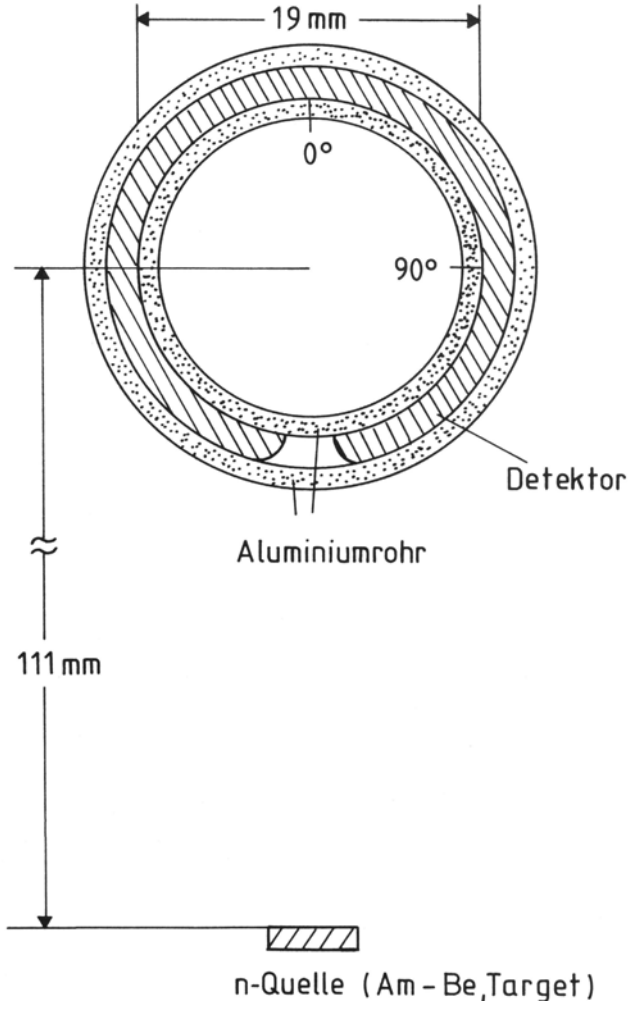


Abb. 12 Anordnung eines Detektors während der Bestrahlung mit monoenergetischen und Am-Be Neutronen

In Tabelle 2 sind Bestrahlungsdaten für monoenergetische [45, 46] und Am-Be Neutronen zusammengestellt. Jeweils zwei Detektoren wurden gleichzeitig mit monoenergetischen Neutronen bestrahlt. Die Neutronenenergie hängt vom Winkel relativ zur Strahlachse ab, unter dem die Neutronen aus dem Target emittiert werden. Die in der letzten Spalte der Tabelle aufgeführte Energiedivergenz ist die größte relative Schwankung der Energie über den von den beiden Detektoren eingenommenem Raumwinkel. Für stark exotherme Reaktionen (Tab. 7) sind kleine Energiedivergenzen charakteristisch.

Ein Detektor wurde mit Am-Be Neutronen bestrahlt. Die Quellstärke der 20 Jahre alten Am-Be Quelle war aus den in Kap. A II. 1.2 genannten Gründen nicht genau bekannt. Die Meßergebnisse wurden hier nur im Hinblick auf die Winkelabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit interpretiert.

Tabelle 2: Bestrahlungsdaten für winkelbestrahlte Detektoren

$E_n(0°)$ [MeV]	Expositions-zeit [h]	Fluenz für r=10 cm [10^9 cm^{-2}]	Energiedivergenz $\frac{E_n(0°)-E_n(12°)}{E_n(0°)}$
0.565	3.13	5.620±0.287	0.014
1.200	4.55	5.521±0.226	0.021
2.500	3.01	7.716±0.262	0.018
5.000	7.49	6.011±0.192	0.012
14.800	2.00	7.374±0.247	0.001
Am-Be	638	≈ 10	—

6.2.2 Meßergebnisse

Für die Energien 0.565 MeV, 1.2 MeV, und 2.5 MeV konnten keine neutroneninduzierten Spuren nachgewiesen werden. Die Zählrate zeigte keine Winkelabhängigkeit. Sie lag zwischen 73 Sp cm^{-2} und 156 Sp cm^{-2} und entsprach damit der üblichen Nullrate. Erst auf den mit 5 MeV Neutronen bestrahlten Detektoren zeigte sich eine winkelabhängige Spurenrate. Die Nachweis Wahrscheinlichkeit betrug für senkrechten Einfall 1.2 10^{-6} Sp n^{-1}. Die Schwellenenergie für den Neutronennachweis liegt somit zwischen 2.5 MeV und 5.0 MeV. Die Abbildungen 13, 14 und 15 zeigen die Nachweiswahrscheinlichkeit als Funktion des Neutroneneinfallswinkels für 5.0 MeV, 14.8 MeV und Am-Be Neutronen. Die zusätzlich eingezeichneten cos-Funktionen sind für die Diskussion im folgenden Kapitel von Bedeutung. Die gemessenen Nachweiswahrscheinlichkeiten für senkrechten und die berechneten für isotropen Einfall sind in Abb. 16 als Funktion der Energie aufgetragen. Den durch die Meßpunkte gelegten Kurven liegt die Annahme zugrunde, daß die Nachweiswahrscheinlichkeit im Bereich um 14 MeV konstant wird. Eine ähnliche Energieabhängigkeit wurde auch am Polycarbonat Makrofol E beobachtet [57]. Die Schwellenenergie liegt hier zwischen 0.47 MeV und 4.37 MeV, die Nachweiswahrscheinlichkeit ist für E_n > 6 MeV annähernd konstant.

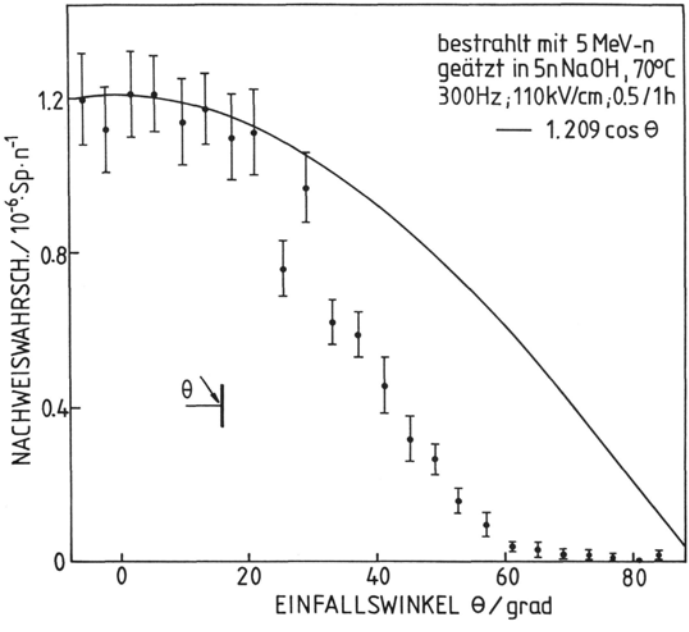


Abb. 13 Winkelabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit für 5 MeV Neutronen

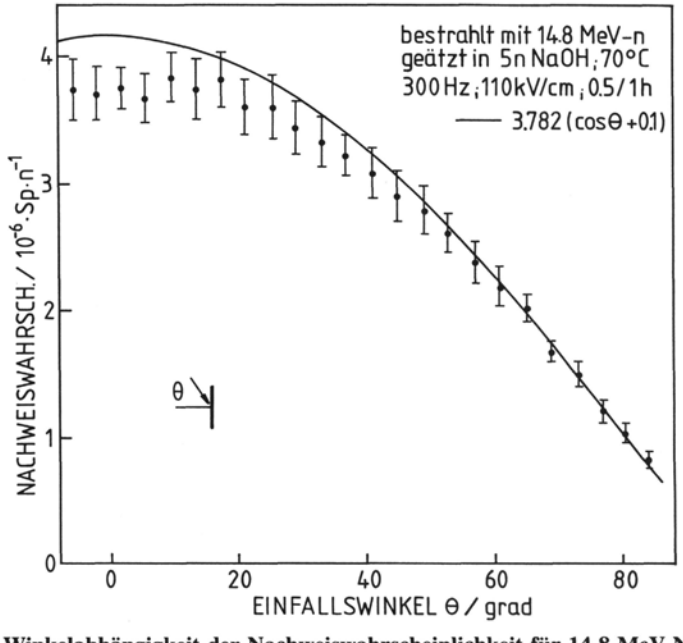


Abb. 14 Winkelabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit für 14.8 MeV Neutronen

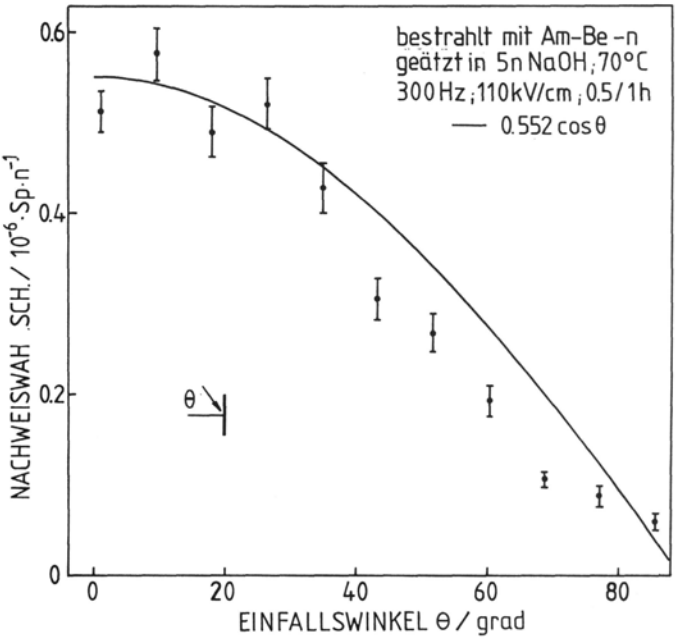


Abb. 15 Winkelabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit für Am-Be Neutronen

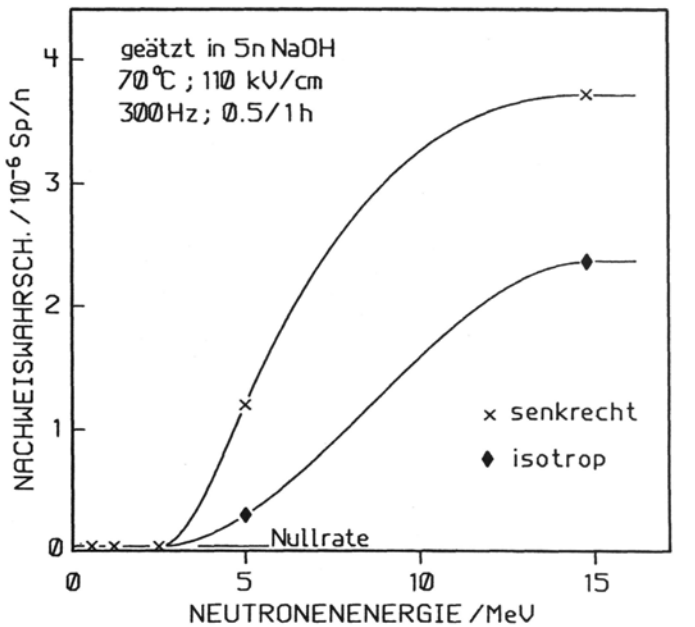


Abb. 16 Energieabängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit für senkrechten und 2π-isotropen Neutroneneinfall

Die Nachweiswahrscheinlichkeit für (sphärisch) isotropen Neutroneneinfall (2π-Raumwinkel) berechnet sich aus der winkelabhängigen nach:

$$\epsilon_{2\pi} = \int_0^{\pi/2} \epsilon(\Theta) \cdot \sin\Theta \, d\Theta \tag{9}$$

Für 5 MeV- und 14.8 MeV Neutronen ergeben sich Nachweiswahrscheinlichkeiten von $0.299 \cdot 10^{-6}$ Sp/n (807 $Sp \cdot cm^{-2} Sv^{-1}$), bzw. $2.364 \cdot 10^{-6}$ Sp/n (4385 $Sp \cdot cm^{-2} Sv^{-1}$).

Bei bekannter spektraler Verteilung N (E) der Neutronen läßt sich aus der energieabhängigen Nachweiswahrscheinlichkeit ϵ (E) die effektive Nachweiswahrscheinlichkeit für ein Neutronenspektrum berechnen:

$$\epsilon_{eff} = \frac{\int \epsilon(E) \cdot N(E) \, dE}{\int N(E) \, dE} \tag{10}$$

Für das Cf-252 Spektrum ergibt sich mit Gleichung (25) (s. Anhang) und der ϵ(E)-Kurve aus Abb. 16 (senkrechter Einfall) ein Wert von $0.372 \cdot 10^{-6}$ Sp/n bzw. 1117 $Sp \cdot cm^{-2} Sv^{-1}$, der gut mit der experimentell ermittelten Nachweiswahrscheinlichkeit von 1230 $Sp \cdot cm^{-2} Sv^{-1}$ übereinstimmt (Kap. 6.1.2). Für Neutronenwaffen wurden Spektren berechnet, deren hochenergetische, vom Detektor registrierte Komponente, vor allem der 14 MeV Fusionspeak, stark ortsabhängig ist [56]. Daraus resultiert ein ortsabhängiges ϵ_{eff}. Informationen über die Lage des Explosionszentrums sollten daher, falls verfügbar, in die Abschätzung der Dosis einbezogen werden.

6.2.3 Diskussion der Ergebnisse

Nach dem REL-Modell (Kap. A.1.2) bilden die Rückstoßkerne nur dann ätzbare latente Spuren, wenn der für das Bremsmedium charakteristische REL-Schwellwert überschritten wird. Für das Ausweismaterial ist aufgrund seiner a-Unempfindlichkeit ein Schwellwert von mindestens 2200 MeV $cm^2 g^{-1}$ zu erwarten (Kap. 5), so daß nur die im Polymer enthaltenen Kohlenstoff- und Sauerstoffkerne als spurerzeugende Teilchen in Frage kommen. Tabelle 3 enthält REL- und Reichweitedaten für C- und O-Kerne, die mit dem Programm von BENTON und HENKE berechnet wurden. Als Modellpolymere wurden die Polyester Lexan (Polycarbonat) und Mylar (Polyethylentherephtalat) gewählt. Die berechneten Werte gelten für die maximale Energie der Rückstoßkerne, die diese beim elastischen Stoß mit Neutronen der angegebenen Energie erhalten (G1.21, $\Phi = 0$). Der REL steigt in dem hier betrachteten Energiebereich monoton an und ist nur unwesentlich kleiner als der LET.

Die Energieabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit kann mit einem REL-Schwellwert von ungefähr 7200 MeV cm^2g^{-1} erklärt werden, wenn eine vergleichbare chemische Zusammensetzung der neutronensensitiven Ausweisschicht und der Modellpolymere vorausgesetzt wird. Die von 2.5 MeV Neutronen erzeugten Rückstoßkerne hinterlassen dann keine ätzbaren latenten Spuren im Material. Bei höheren Neutronenenergien überschreiten zunächst die Rückstoßkerne aus zentralen, elastischen Stößen, dann zunehmend auch die unter größeren Winkeln gestreuten Kerne den REL-Schwellwert (Gl. [21]). Die Folge ist eine Zunahme der Zahl ätzbarer latenter Spuren.

Das Überschreiten des REL-Schwellwertes führt zunächst nur zu einer chemischen Ätzbarkeit der latenten Spur. Für den Einsatz des „treeing" beim elektrochemischen Ätzen muß zusätzlich die kritische Spitzenfeldstärke überschritten werden, die nach Gleichung (4) maßgeblich vom

Tabelle 3: REL und Reichweite von C- und O-Kernen in Lexan und Mylar

	Lexan				Mylar			
E_n [MeV]	REL [$MeV \cdot cm^2g^{-1}$]		Reichweite [μm]		REL [$MeV \cdot cm^2g^{-1}$]		Reichweite [μm]	
	^{12}C	^{16}O	^{12}C	^{16}O	^{12}C	^{16}O	^{12}C	^{16}O
2.5	6726	7241	1.19	0.90	6502	7010	1.71	1.29
5.0	7785	8816	1.95	1.44	7524	8530	2.79	2.05
14.8	8318	11170	4.56	3.08	8057	10808	6.54	4.41

Krümmungsradius der Spurspitze bestimmt wird. Da dieser mit zunehmender Länge der Spur kleiner wird, nimmt die Feldverstärkung mit der Reichweite des spurerzeugenden Teilchens zu. Neben dem REL-Schwellwert ist dieser Effekt offenbar für die beobachtete Energieabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit verantwortlich.

In einem parallelen Neutronenstrahl folgt die Anzahl der auf ein Detektorflächenelement treffenden Neutronen einer cos-Funktion:

$$F_n(\Theta) = F_0 \cdot \cos\Theta \tag{11}$$

Dabei bezeichnet Θ den Winkel zwischen Neutroneneinfallsrichtung und Flächennormale. Die cos-Abhängigkeit der Fluenz hat jedoch nur dann ein analoges Verhalten der Nachweiswahrscheinlichkeit zur Folge, wenn die durch die Neutronenenergie bestimmte maximale Reichweite L_E der Rückstoßkerne kleiner als die Tiefe d_0 des Auswertevolumens (d.i. die während des Ätzvorgangs abgetragene Schicht) ist [5]. Die Rückstoßkerne werden nach Gl. (23) und (24) bevorzugt in die Neutroneneinfallsrichtung gestreut, C- und O-Kerne noch stärker als Protonen. Die Fluenz der Rückstoßkerne geht daher ungefähr in der Tiefe $L_E \cdot \cos\Theta$ in die Sättigung und

ist in der Tiefe (I_0 konstant, falls $L_E<d_0$ ist. Die Dichte der latenten Spuren wird dann allein durch die winkelabhängige Neutronenfluenz nach Gl. (11) bestimmt.

Ist dagegen $L_E>d_0$, wird die Abnahme der Fluenz gemäß Gl. (11) dadurch kompensiert, daß entlang der effektiven Neutronenweglänge $Cl_0/\cos\Theta$ eine entsprechend größere Anzahl Rückstoßkerne erzeugt wird, die die in der Tiefe d_0 gelegene Schicht erreichen. Die Dichte der latenten Spuren wird damit winkelunabhängig.

Die mit 14.8 MeV Neutronen gemessene Winkelabhängigkeit ist am einfachsten mit einer Überlagerung der diskutierten Fälle zu deuten. Die Nachweiswahrscheinlichkeit bleibt bis zu einem Winkel von ca. 20° annähernd konstant und folgt nach einem Übergangsbereich zwischen 20° und ~ 40° einer cos-Funktion (Abb. 14). Mit den in Tabelle 3 für Lexan angegebenen Reichweiten läßt sich die Schichtdicke d_0 zu 2—4 μm abschätzen. Bei 1.5 h Gesamtätzzeit resultiert hieraus eine mittlere Oberflächenätzgeschwindigkeit von 1.3—2.7 μm/h Vergleichbare Ätzraten wurden für Lexan gemessen [26].

Aufgrund der kleineren Reichweite der Rückstoßkerne sollte sich bei einer Neutronenenergie von 5 MeV über dem gesamten Winkelbereich eine cos-Abhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit einstellen. Dieser Verlauf deutet sich auch für $\Theta<20°$ an. Bei größeren Winkeln fällt die Nachweiswahrscheinlichkeit jedoch wesentlich stärker ab und geht bei $\theta\sim60°$ gegen Null (Abb. 14). Hier spielt vermutlich der bisher nicht berücksichtigte kritische Winkel eine Rolle (Kap. A. 1.4). Ist die Spur nicht mehr parallel zu den Feldlinien orientiert, nimmt die Feldverstärkung an der Spurspitze ab. Nach den vorhergehenden Überlegungen zur Energieabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit verringert sich die Feldverstärkung auch mit der Spurlänge, d.h. mit der Reichweite der Rückstoßkerne. Da die spurerzeugenden C- und O-Kerne bevorzugt in Vorwärtsrichtung gestreut werden, muß bei einem bestimmten, energieabhängigen Neutroneneinfallswinkel die kritische Feldstärke unterschritten werden.

Die mit Am-Be-Neutronen bestrahlten Detektoren zeigen bis $\theta\sim35°$ eine cos-förmige Winkelabhängigkeit (Abb. 16). Die auch hier für größere Winkel erkennbare Abweichung vom cos-Verlauf fällt, bedingt durch den hochenergetischen Anteil des Neutronenspektrums, schwächer aus.

6.3 Untersuchungen an getragenen Ausweiskarten

In den bisher durchgeführten Untersuchungen wurde ausschließlich fabrikneues Material verwendet. Die Spurenrate auf den unbestrahlten, unter Standardbedingungen geätzten Detektoren betrug maximal 150 Sp-cm^{-2}. Wie sich aus den Untersuchungen zur Vorätzzeit und zur Lau-

genkonzentration ergab, wird diese Nullrate überwiegend von Materialdefekten verursacht, die in der abgeätzten Schicht verteilt waren. Die Oberfläche von Ausweiskarten, die längere Zeit, in der Praxis maximal 10 Jahre, im Gebrauch waren, ist durch mechanische Einwirkungen (Druck, Biegung, Reibung) mehr oder weniger geschädigt. Die dabei entstandenen, mit bloßem Auge nicht sichtbaren Oberflächendefekte (Vertiefungen, Kratzer, Mikrorisse) wirken beim elektrochemischen Ätzen feldverstärkend und erhöhen dadurch die Nullrate. Möglicherweise trägt auch eine natürliche Alterung des Materials zur Defektbildung bei.

Um beurteilen zu können, inwieweit die Nullratenerhöhung die Eignung der Karten als Katastrophendosimeter beeinträchtigt, sind folgende Fragen zu klären:

— Wie hängt die Nullrate vom Alter der Karte ab?
— Welche individuellen Unterschiede zeigen Nullrate und Nullratenschwankung?
— In welchem Ausmaß kann die Nullrate durch längeres Vorätzen verringert werden?
— Wie kann bei hoher (unbekannter) Nullrate die Dosis abgeschätzt werden?

Zur Beantwortung dieser Fragen diente eine Untersuchung an fünf längere Zeit getragenen Ausweiskarten, die von den (männlichen) Trägern im Portemonnaie aufbewahrt wurden. Die Karten wurden danach wie üblich zerteilt, zum Teil mit Cf-252 Neutronen bestrahlt und anschließend elektrochemisch geätzt. Die Ausweiskarten werden im folgenden mit römischen Ziffern, die sechs Detektoren pro Karte durch nachgestellte arabische Ziffern gekennzeichnet. Zum Beispiel bezeichnet III.5 den Detektor Nr. 5 der dritten Ausweiskarte.

6.3.1 Nullrate

Unbestrahlte Detektoren aus den getragenen Ausweiskarten wurden mit verschiedenen Vorätzzeiten bei sonst unveränderten Ätzparametern elektrochemisch geätzt. Bei der Spurenzählung wurden in gerader Linie aneinandergereihte, offensichtlich durch Kratzer verursachte Spuren ignoriert. Tabelle 4 enthält die auf diese Weise ermittelten Nullraten.

Die Tabelle zeigt zunächst die deutliche Abhängigkeit der Nullrate von der Vorätzdauer. Das halbstündige Vorätzen bewirkt einen Rückgang der Nullrate um einen Faktor 2—3 (Karte I). Ein erheblicher Teil der Nullrate wird also von Oberflächendefekten hervorgerufen. Der verbleibende Rest rührt von Defekten her, die von der Oberfläche in tiefere Schichten hineinreichen oder von im Material entstandenen Volumendefekten. Eine Ausdehnung der Vorätzzeit auf eine Stunde verringert die Nullrate nochmals um

mindestens den Faktor 2 (Karte II). Das einstündige Vorätzen sollte bei getragenen Ausweiskarten grundsätzlich angewendet werden, um die Nullrate in jedem Fall auf ein für die Spurenzählung akzeptables Maß zu reduzieren. Die Nullraten auf der Ausweiskarte II liegen allerdings immer noch um einen Faktor 20—30 über denen neuer Karten. Ein Vergleich der einstündig vorgeätzten Detektoren aus verschiedenen Karten zeigt stark differierende Nullraten. Die mittleren Nullraten auf den Karten II, III und IV betragen 4420+689, 208+64 und 466+178 Sp cm^{-2}. Der halbstündig vorgeätzte Detektor II.1 zeigt bei vergleichbarer Tragezeit eine etwa 3mal so hohe Nullrate wie die Detektoren I.2 und I.6. Die Nullrate auf der nur

Tabelle 4: Nullraten auf getragenen Ausweiskarten

Karte Nr.	Tragezeit [d]	Detektor	Vorätzzeit [h]	Nullrate [$Sp \cdot cm^{-2}$]
I	460	I.1	0	11991
		I.4	0	8361
		I.2	0.5	3662
		I.6	0.5	4425
II	491	II.1	0.5	11585
		II.2	1	4883
		II.3	1	3628
		II.5	1	4749
III	222	III.1	1	188
		III.2	1	279
		III.3	1	156
IV, V	52	IV.1	1	354
		IV.4	1	672
		IV.5	1	373

52 Tage getragenen Karte IV ist größer als die Nullrate auf der etwa 4mal so lange getragenen Karte III. Diese individuellen Unterschiede machen eine Abschätzung der Nullrate aus dem Alter der Ausweiskarte unmöglich.

Wird die Karte als Katastrophendosimeter eingesetzt, stehen natürlich keine unbestrahlten Detektoren zur Ermittlung der Nullrate zur Verfügung. Um die Anteile der neutroneninduzierten und der durch Oberflächendefekte verursachten Spuren an der gezählten Spurenzahl zu bestimmen, können zusätzliche Informationen nur aus den Spurenverteilungen auf den Detektoren gewonnen werden. Hierzu wird im folgenden ein Verfahren vorgeschlagen.

6.3.2 Dosisbestimmung bei hoher Nullrate

Die auf Detektoren mit hoher Nullrate gezählte Spurenzahl gibt noch keine zuverlässige Auskunft über die Zahl der neutroneninduzierten Spuren. Da sich defekt- und η-induzierte, elektrochemisch geätzte Spuren praktisch nicht voneinander unterscheiden, lassen sich letztere während der Zählung nicht aussortieren. Eine Möglichkeit, dennoch den Anteil der Nullrate an der Gesamtspurenzahl abzuschätzen, ergibt sich aus der Verteilung der Spuren auf der Detektorfläche. Bei homogener Detektorempfindlichkeit sollten die neutroneninduzierten Spuren „gleichmäßig", d.h. normalverteilt sein. Wurden s Spuren auf der Fläche A gezählt, enthält jedes Flächenelement δA im Mittel $s \cdot \delta A/A$ Spuren. Für die von Defekten herrührenden Spuren ist eine ungleichmäßige Verteilung zu erwarten. An den Stellen hoher Schädigung treten sie gehäuft auf, während einzelne, unbeschädigt gebliebene Bereiche völlig frei von Spuren sind. Das im folgenden dargestellte Verfahren zur Dosisabschätzung bei hoher Nullrate beruht auf diesem Unterschied in den Spurenverteilungen.

Die Häufigkeitsverteilung der Spuren wurde durch Zählen der Spuren in den 100 Feldern der 10 x 10 Lochmatrix ermittelt. Die mittlere Spurenzahl pro Zählfeld sei μ, deren Standardabweichung σ. Das Intervall $[\mu-3\sigma, \mu+3\sigma]$ wird in 10—20 Klassen eingeteilt und die relative Häufigkeit der Zählfelder, die eine in eine bestimmte Klasse fallende Spurenzahl enthalten, bestimmt. Die so gewonnene Häufigkeitsverteilung wird in Form eines Histogramms dargestellt Die Abbildungen 17a-c zeigen Verteilungen für folgende Fälle:

(1) 4 neue Detektoren mit 3.8 Sv bestrahlt, geätzt unter Standardbedingungen in alter Lauge
(2) Detektor II.2, unbestrahlt, 1 h vorgeätzt
(3) Detektor II.4, mit 2 Sv bestrahlt, 1 h vorgeätzt

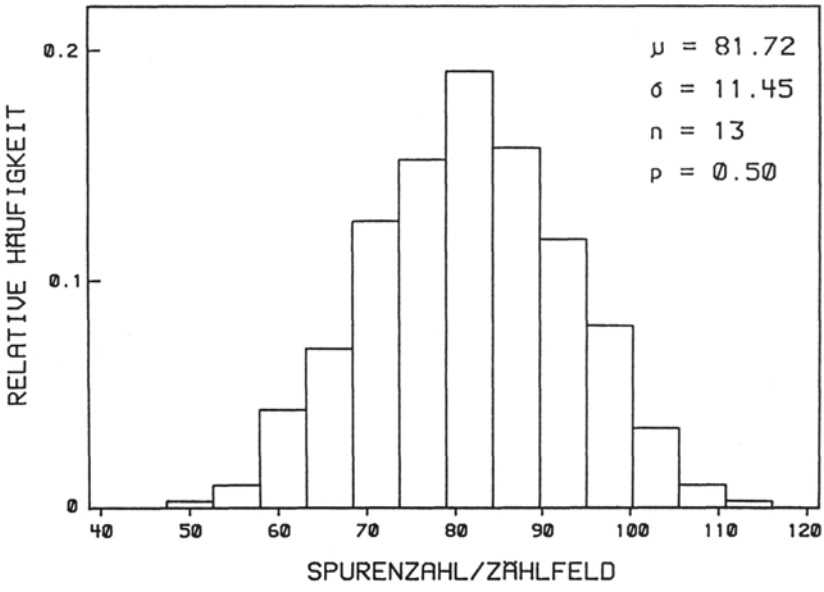


Abb. 17a Häufigkeitsverteilung der Spurenzahl pro Zählfeld für vier neue Detektoren, mit 3.8 Sv bestrahlt

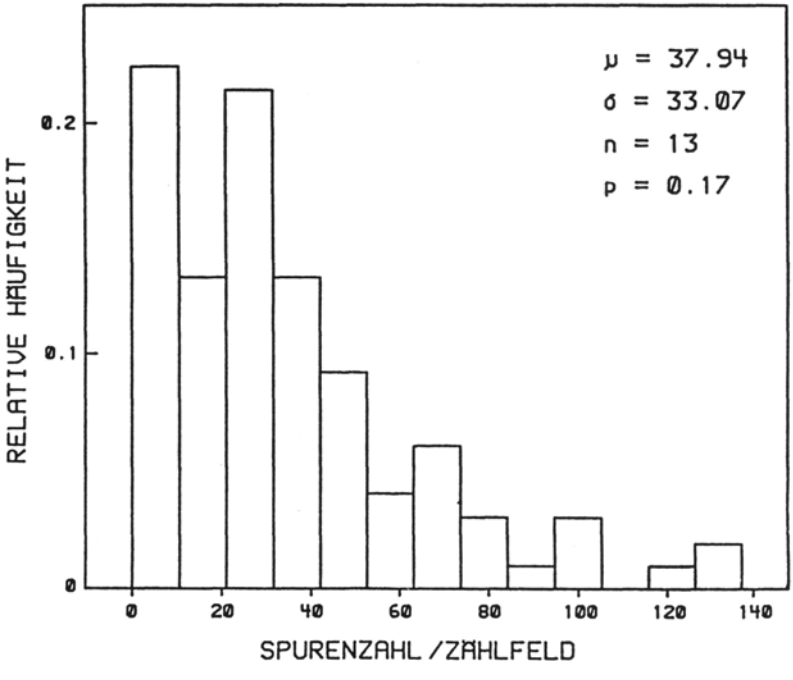


Abb. 17b Häufigkeitsverteilung der Spurenzahl pro Zählfeld für Detektor II.2, unbestrahlt

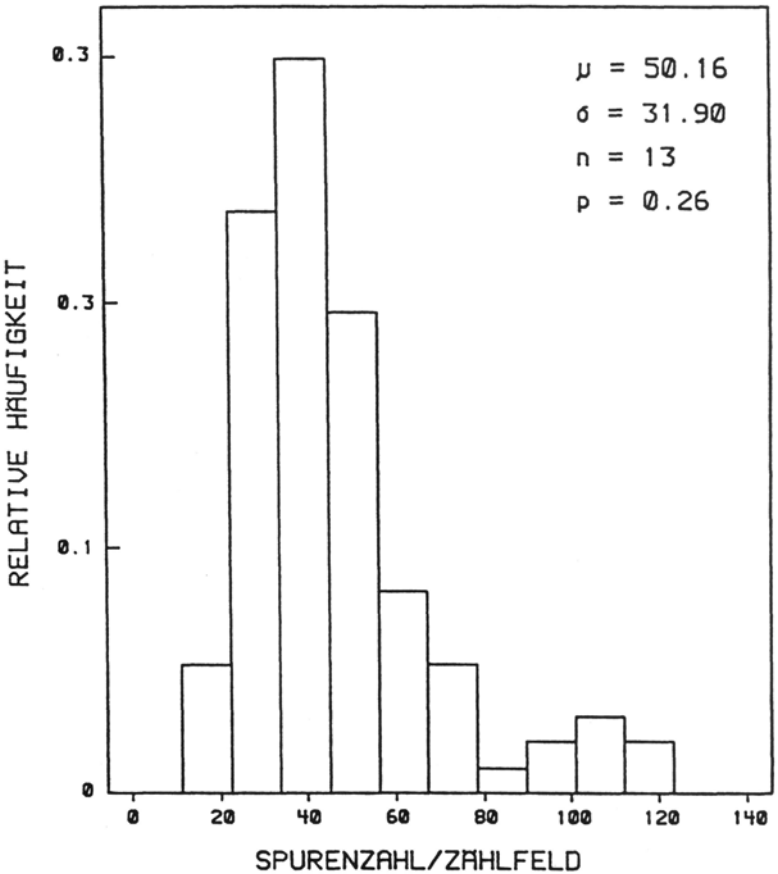


Abb. 17c Häufigkeitsverteilung der Spurenzahl pro Zählfeld für Detektor II .4, mit 2 Sv bestrahlt

In jedem Fall wurden 13 Klassen gewählt. Für Fall (1) wurde die Häufigkeitsverteilung aus den vier zum 3.8 Sv-Meßpunkt der Spurenrate-Dosis-Messung (Kap. 6.1.3) gehörenden Detektoren ermittelt, was 400 Zählfeldern entspricht. Die mittlere, auf konventionelle Weise ermittelte Spurenrate betrug ~8500 Sp cm^{-2}, die Nullrate 75 Sp cm^{-2}. Hier liegt annähernd der Idealfall einer Verteilung neutroneninduzierter Spuren vor. Die Verteilung ist symmetrisch, der Streuungskoeffizient, das Verhältnis von Standardabweichung σ und Mittelwert μ der Spurenzahl pro Zählfeld, beträgt 0.14. Die Verteilung in Fall (2) bietet ein völlig anderes Bild. Sie ist stark asymmetrisch, der Streuungskoeffizient ist größer als in Fall (1) (σ/μ=0.87). Die Verteilung auf dem bestrahlten Detektor in Fall (3) liegt „zwischen“ Fall (1) und Fall (2). Sie ist immer noch asymmetrisch, zeigt

aber im Gegensatz zu Fall (2) einen Anstieg bis zum Maximum. Das Verhältnis σ / μ beträgt hier 0.64.

Einen ersten Hinweis auf eine hohe, mit der Spurenrate vergleichbare Nullrate liefert daher die relative Streuung σ / μ der Spurenzahl pro Zählfeld. Sie ist für neue, unter Standardbedingungen geätzte Detektoren mit Spurenraten über 1500 Sp cm^{-2} erfahrungsgemäß immer kleiner als 0.3. Wird ein größerer Wert ermittelt, ist mit einer erhöhten Nullrate zu rechnen.

Um die durch die Nullrate verursachte Asymmetrie der Verteilung quantitativ zu erfassen, wurden die Häufigkeitsverteilungen durch Binomialverteilungen angenähert. Für eine Einteilung in η Klassen, die von 0 bis n—1 numeriert werden, ist die Binomialverteilung definiert durch:

$$b(n-1,\ k,\ p)=\frac{(n-1)!}{k!\,(n-1-k)!}\cdot p^k\cdot(1-p)^{n-1-k};\ k=0,\ ..,\ n-1 \qquad (12)$$

Die Bernoulli-Wahrscheinlichkeit p wird hier als Parameter für die Anpassung benutzt. Sind h (k) die relativen Häufigkeiten, ergibt sich p aus der Forderung nach minimaler Fehlerquadratsumme:

$$\sum_{k=0}^{n-1}(b[n-1,\ k,\ p]-h[k])^2\rightarrow \mathrm{Min} \qquad (13)$$

Der optimale Wert wird iterativ auf 1/100 genau bestimmt.

Für eine symmetrische Verteilung ist p=0.5. Verteilungen mit positiver Schiefe, wie sie bei reinen Nullraten- und mit hoher Nullrate behafteten Spurratenverteilungen vorliegen, sind durch kleinere Werte von p im Bereich 0—0.3 charakterisiert. Die für die Fälle (1)—(3) gefundenen besten Parameter sind bei den entsprechenden Histogrammen angegeben. Die Wahl der Klasseneinteilung beeinflußt geringfügig den Parameter p. Für Klassenzahlen zwischen 10 und 20 variiert p um 0.01—0.02. Im folgenden wird n=13 gewählt.

Eine Untersuchung der Spurverteilungen auf 24 Detektoren aus der Spurenrate-Dosis Messung (Kap. 6.1.2) mit Spurenraten zwischen 1500 und 8500 Sp·cm^{-2} ergab p=0.49±0.01. Für die einstündig vorgeätzten, unbestrahlten Detektoren der getragenen Ausweiskarten II, III und IV ergeben sich die Mittelwerte p=0.17±0.05, p=0.05±0.02 und p=0.07±0.04. Im allgemeinen erhält man für Detektoren mit hoher Nullrate größere p-Werte. Die Oberfläche dieser Detektoren ist gleichmäßiger geschädigt. In fast allen Zählfeldern sind defektinduzierte Spuren zu finden, wodurch die Verteilung weniger asymmetrisch wird.

Der Parameter p wird unter folgenden Annahmen zur Nullratenkorrektur der Zählrate verwendet (Z=Zählrate, S=Spurenrate, N=Nullrate, Z=S+N):

1. für $p \leq p_0$ gilt: $S=0,\ N=Z$ (14a)
2. für $p \geq p_1$ gilt: $S=Z,\ N=0$ (14b)
3. für $p_0 < p < p_1$ gilt: $S=\frac{p-p_0}{p_1-p_0} \cdot Z,\ N=Z-S$ (14c)

Im Bereich $p_0<p<p_1$ wird also eine linear mit p zunehmende Spurenrate angenommen. Aufgrund der oben genannten Ergebnisse werden für diesen Bereich die Grenzen $p_0=0.2$ und $p_1=0.48$ gewählt. Tabelle 5 zeigt die mit diesem Verfahren ermittelten Spurenraten für bestrahlte Detektoren (Cf-252). Die Vorätzzeit betrug 1 h für die Detektoren der Karten II, III und IV, und 0.5 h für die Detektoren der Karte V.

Tabelle 5: Zählrate, korrigierte Spurenrate und Nachweiswahrscheinlichkeit ϵ' bestrahlter Detektoren

Detektor	Dosis [Sv]	Zählrate [Sp·cm^{-2}]	p	Spurenrate [Sp·cm^{-2}]	ϵ' [Sp·cm^{-2}Sv^{-1}]
II.4	2	6456	0.26	1383	692
III.4	2	2855	0.49	2855	1428
IV.3	2	2968	0.51	2968	1484
II.6	0.5	8314	0.18	0	0
III.6	0.5	986	0.39	669	1338
IV.2	0.5	1361	0.34	681	1362
V.2	0	774	0.19	0	0
V.6	0.64	1885	0.33	875	1367
V.5	1.45	4228	0.37	2567	1770
V.4	2.36	4473	0.47	4313	1828
V.3	3.34	7089	0.47	6836	2047
V.1	4.32	8885	0.47	8568	1983

Die mit (14a—c) ermittelten Nachweiswahrscheinlichkeiten zeigen gute Übereinstimmung für Nullraten unterhalb von etwa 1000 Sp cm^{-2} (Tabelle 4). Die mittlere Nachweiswahrscheinlichkeit beträgt 1403 Sp Cm^{-2}Sv^{-1} für die einstündig vorgeätzten Detektoren III.4, IV.3, III.6 und IV.2, bei einer maximalen Abweichung vom Mittelwert von 6%. Die Zähl- und korrigierten Spurenraten der halbstündig vorgeätzten Detektoren V.l—V.6 sind in Abb. 18 gegen die Dosis aufgetragen Durch die korrigierten Meßpunkte wurde eine Ausgleichsgerade gelegt, deren Steigung einer Nachweiswahrscheinlichkeit von 1960 Sp Cm^{-2}Sv^{-1} entspricht. Der — im Vergleich zu dem mit neuer Lauge ermittelten — höhere Wert ist

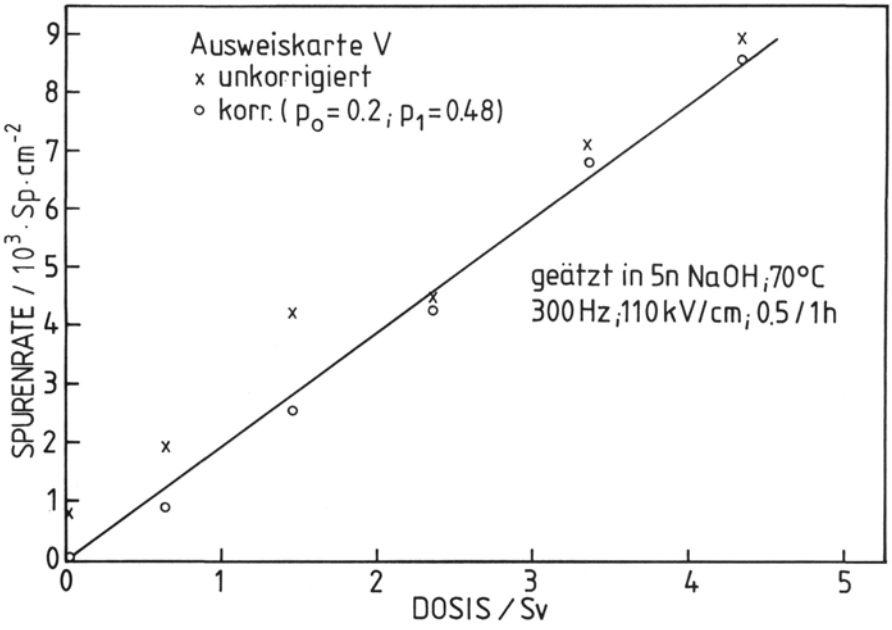


Abb. 18: Zählraten und korrigierte Spurenraten in Abhängigkeit von der Dosis

auf die Verwendung einmalig benutzter Lauge zurückzuführen (Kap. 6.2). Die längere Vorätzdauer verringert die Nachweiswahrscheinlichkeit um 28%.

Die Wirkung der Korrektur macht sich besonders im Dosisbereich bis 1.5 Sv bemerkbar. Die Zählrate auf Detektor V.2 wird richtig als Nullrate erkannt, insgesamt wird die Linearität verbessert. Die maximale Abweichung einer korrigierten Spurenrate von der Ausgleichsgeraden beträgt 593 Sp cm^{-2}. Dies entspricht einer Unsicherheit der Dosisschätzung von 30 cSv. Für die Detektoren II.4 und II.6 sind nach Tabelle 4 Nullraten von über 3000 Sp cm^{-2} anzunehmen. Das Verfahren liefert hier keine brauchbaren Resultate. Die 2 Sv-Dosis wird um die Hälfte unterschätzt, 0.5 Sv werden nicht erkannt. Da nur zwei bestrahlte Detektoren mit hohen Nullraten zur Verfügung standen, sollte dieses negative Ergebnis nicht verallgemeinert werden. Über die Brauchbarkeit des Verfahrens bei hohen Nullraten kann nur nach weiteren Untersuchungen entschieden werden.

Die untere Nachweisgrenze kann mit Hilfe des 3a-Kriteriums und den Nullraten in Tabelle 4 abgeschätzt werden. Für die einstündig vorgeätzten Detektoren der Karten IL, III. IV ergeben sich 1.47 Sv, 0.14 Sv und 0.38 Sv. Daraus muß der Schluß gezogen werden, daß eine Abschätzung der Dosis im Bereich 0.5—1.5 Sv nur für relativ kleine Nullraten (bis ca. 1000 Sp cm^{-2}) sinnvoll ist.

Eine Verbesserung des Verfahrens ist durch geeignete Wahl der Parameter (Intervallbreite für Klasseneinteilung, Anzahl Klassen, p_0, p_1) möglich. Dazu müssen umfangreichere Stichproben, vor allem von länger getragenen Ausweiskarten, zur Verfügung stehen. Eventuell könnte auch eine weitere Verlängerung der Vorätzzeit in Betracht gezogen werden.

7 Zusammenfassung

Beim Einsatz taktischer Nuklearwaffen im kT-Bereich („Neutronenwaffen“) ist mit einer hohen Strahlenbelastung von Teilen der Zivilbevölkerung zu rechnen. Akute Strahlenschäden mit Heilungschancen treten bei Dosen von etwa 1—5 Sv auf. Aufgrund ihrer hohen biologischen Wirksamkeit ist der Nachweis schneller Neutronen besonders wichtig. Dafür standen der Katastrophendosimetrie bisher keine geeigneten Detektormaterialien zur Verfügung.

Es ist gelungen, unter den Plastikkarten, welche heute zunehmend als Scheck-, Kredit- und Ausweiskarten Verwendung finden, ein weit verbreitetes Exemplar zu finden, das aufgrund seiner aus polymeren Kunststoffen bestehenden Hülle eine Möglichkeit zum Neutronennachweis mit dem Kernspurätzverfahren eröffnet. Dieses bereits in der Personendosimetrie angewandte Verfahren zeichnet sich durch geringen apparativen Aufwand und einfache Auswertung der geätzten Detektoren (Spurenzählung) aus. Durch die in den letzten Jahren wesentlich verbesserten elektronischen Bildanalysegeräte kann die Auswertung weitgehend automatisiert werden.

Die Untersuchungen haben gezeigt, daß die Kunststoffhülle der Ausweiskarte (Polyethylen-Polyester-Verbundlaminat) zum Nachweis schneller Neutronen mit dem Kernspurätzverfahren geeignet ist. Neue Ausweiskarten zeigen für Dosen bis etwa 9 Sv einen annähernd linearen Zusammenhang zwischen Dosis und Spurenrate. Die untere Nachweisgrenze liegt bei 5 cSv, die Dosis kann bis 5 Sv im Mittel auf 8 cSv genau bestimmt werden.

Bei getragenen Ausweiskarten ergeben sich infolge mechanischer Einwirkungen durch die Benutzung teilweise stark erhöhte Nullraten und damit Einschränkungen für die dosimetrische Eignung. Die individuellen Gewohnheiten des Ausweisträgers sind eher für die Höhe der Nullrate bestimmend als die Tragedauer. Längeres Vorätzen senkt die Nullrate, verringert aber die Nachweiswahrscheinlichkeit und verlängert die Auswertezeit. Mit einer Vorätzzeit von 1 h wurden die besten Erfahrungen gemacht, die Gesamtätzdauer beträgt dann 2 h.

Im Ernstfall kann die Nullrate nicht aus unbestrahlten Teilen des Ausweises ermittelt werden. Die Nullrate aufgetragenen Ausweiskarten ist jedoch nicht vernachlässigbar und muß ungefähr bekannt sein, wenn eine Fehlschätzung der Dosis vermieden werden soll. Die Untersuchungen zeigen charakteristische Unterschiede in den Verteilungen von neutroneninduzierten und von Oberflächendefekten herrührenden Spuren auf der Detektor-

fläche. Darauf aufbauend wurde ein statistisches Verfahren vorgeschlagen, das für Nullraten bis etwa 1000 Sp cm^{-1} eine Dosisbestimmung im Bereich 0.6—5 Sv mit einer Genauigkeit von 30 cSv gestattet. Eine mit größerer Nullrate (>3000 Sp cm^{-1}) behaftete Ausweiskarte ist nach den vorliegenden Ergebnissen noch als Indikator für Dosen >1.5 Sv geeignet.

Aussagen über das Nachweisverhalten des Detektormaterials im Strahlungsfeld einer Kernwaffe sind nur mit Kenntnis der Energie- und Winkelabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit möglich. Hierzu wurden Bestrahlungen mit monoenergetischen Neutronen durchgeführt. Die Nachweisschwelle des Materials liegt zwischen den Neutronenenergien 2.5 MeV und 5 MeV. Mit Hilfe des REL-Spurbildungsmodells wurde aus dem Vergleich mit Detektormaterialien der Polyestergruppe auf die spurerzeugenden Rückstoßkerne geschlossen und der REL-Schwellwert des Ausweismaterials abgeschätzt. Die Winkelabhängigkeit wurde für senkrechten und isotropen Neutroneneinfall betrachtet und modellmäßig erklärt.

Während der Lagerung bestrahlter Detektoren nimmt die Zahl der neutroneninduzierten Spuren ab. Dieses Fading ist im untersuchten Temperaturbereich (25°C-50°C) während der ersten Woche annähernd temperaturunabhängig und beträgt pro Tag etwa 3 % der Spurenzahl. Bei der Auswertung kann somit eine entsprechende Korrektur angebracht werden. Nach längerer Lagerzeit bleibt die Spurenzahl konstant. Der Gesamtverlust wird auch von der Temperatur bestimmt.

Ergänzend zu den bereits bekannten Ätzparametern wurde die optimale Konzentration des Ätzmittels (NaOH) zu 5N bestimmt. Eine beim Ätzen in gebrauchter Lauge beobachtete Zunahme der Nachweiswahrscheinlichkeit wurde auf die in Lösung gegangenen Ätzprodukte zurückgeführt. Daher wird die Verwendung frischer Lauge für jede Ätzcharge empfohlen.

Die vorliegenden Untersuchungen zeigen, daß Ausweiskarten eine Abschätzung der Dosis schneller Neutronen in dem für die Katastrophendosimetrie interessanten Dosisbereich mit Einschränkungen ermöglicht. Die mit dem Ausweismaterial gewonnene Information muß gegebenenfalls mit Hilfe anderer Methoden, z.B. aus der biologischen Dosimetrie, ergänzt werden.

8 Empfehlungen

Aufgrund der vorliegenden Resultate kann festgestellt werden, daß mit Hilfe einfacher, erprobter Techniken und mit Geräten, die von der Personendosimetrie her zur Verfügung stehen, mit Ausweiskarten aus Plastikmaterial die Abschätzung von Dosen schneller Neutronen im Bereich der Katastrophendosimetrie möglich ist. Hierdurch kann im Katastrophenfall aus der Zahl der strahlungsexponierten Personen die Gruppe ermittelt werden, die unbedenkliche Dosen erhalten hat. Personen mit hohen Dosen können zügig einer eingehenden medizinischen Untersuchung mit nachfolgender Therapie zugeführt werden.

9 Literaturverzeichnis

[1] A. SITTKUS, Die Kernstrahlenwirkung kleiner (taktischer) Atomwaffenexplosionen, in: Zivilschutzforschung Band 8, Osang, Bad Honnef (1978)

[2] H. MÖNIG, Biologische Wirkungen von Neutronen bei Säugetieren und Menschen, in Zivilschutzforschung Band 8, Osang, Bad Honnef (1978)

[3] FESTSCHRIFT FÜR PAUL WILHELM KOLB, Zivilschutzforschung Band 18, Osang, Bonn (1986)

[4] K. BECKER, A. SCHARMANN, Einführung in die Festkörperdosimetrie, Thiemig, München (1976)

[5] E. PITT, B. WERNER, Kerntechnik 52 (1988) 9

[6] L.E. FEINENDEGEN, A. FELDMANN, E. MÜNCH, M. PASCHKE, Strahlenschutz, Radioaktivität und Gesundheit, Hrsg.: Bayerisches Staatsministerium für Landesentwicklung und Umweltfragen (1986)

[7] M. KOCH, TH. NICKEL, E. PITT, A. SCHARMANN, Katastrophendosimetrie. Dosisabschätzung mit Hilfe der Lyolumineszenz von Zucker, in: Arbeiten aus dem „Fachausschuß II: Radioaktive Niederschläge“, Zivilschutzforschung Band 21, Osang, Bonn (1988)

[8] R.S. ALGER, Radiation Effects in Polymers, in: Physics and Chemistry of the Organic Solid State, Vol.II, D. Fox Editor, Interscience Pub., New York and London (1965)

[9] H.G. PARETZKE, Radiat. Eff., 34 (1977) 3

[10] R. KATZ, EJ. KOBETICH, Phys. Rev. 170 (1968) 401

[11] B. SCHLENK, G. SOMOGYI, A. VALEK, Radiat. Eff., 24 (1975) 247

[12] J. CHARVAT, F. SPURNY, Nucl. Tracks and Rad. Meas. 14 (1988) 451

[13] R.L. FLEISCHER, P.B. Price, R.M. Walker, Nuclear Tracks in Solids, University of California Press, Berkeley (1975)

[14] H. BETHE, Ann. Phys. 5 (1930) 325

[15] F. BLOCH, Z. Phys. 81 (1933) 363

[16] E.V. BENTON, A Study of Charged Particle Tracks in Cellulose Nitrate, USNRDL-TR-68-14, U.S.Nav.Rad.Def.Lab. San Francisco, Calif. (1968)

[17] WH. BARKAS, MJ. BERGER, Tables of Energy Losses and Ranges of Heavy Charged Particles, National Academy of Science-National Research Council, Publication 1133 (1964) 103

[18] E.V. BENTON, R.P. HENKE, Nucl. Instrum. Methods 67 (1969) 87

[19] S.A. DuRRANi, R.K. BULL, Solid State Nuclear Track Detection, Pergamon Press, Oxford (1987)

[20] E.V. BENTON, Radiat. Eff., 2 (1970) 273

[21] J.A. AuxiER, WS. SNYDER, T.D. JONES, Neutron Interactions and Penetration in Tissue, in: Radiation Dosimetry, Vol. I, Editors: EH. Attix, WC. Roesch Academic Press, New York and London (1968)

[22] K. JAMES, MATIULLAH, S.A. DURRANI, Radiat. Prot. Dosim. 19 (1987) 5

[23] E.V. BENTON, CC. PRESTON, F.H. RUDDY, R. Gold, J.M. Roberts, Proc. lOth Conf. SSNTDs, Pergamon Press (1980), 459

[24] T. PORTWOOD, D.L. HENSHAW, Nucl. Tracks and Rad. Meas. 12 (1986) 105

[25] T.A. GRUHN, W.K. LI, E.V. BENTON, R.M. Cassou, CS. Johnson, Proc. lOth Conf. SSNTDs, Pergamon Press (1980), 221

[26] W. ENGE, K. GRABISCH, L. DALLMEYER, K.P. Bartholomä, R. Beaujean, Nucl. Instrum. Methods 127 (1975) 125

[27] L. ToMMASINO, C. ARMELLINI, Radiat. Eff. 20 (1973) 253

[28] M. SOHRABI, Health Phys. 27 (1974) 598

[29] T. MIYASHITA, T. INOUE, Elect. Eng. Jap. 87 (1967) 76

[30] G. SOMOGYI, Nucl. Track. Det. 1 (1977) 3

[31] M. SOHRABI, Nucl. Instrum. Methods. A 238 (1985) 517

[32] E. PITT, A. SCHARMANN, B. WERNER, Radiat. Prot. Dosim. 23 (1988) 179

[33] WR. SMYTHE, Static and Dynamic Electricity McGraw Hill, New York (1939)

[34] H. SAECHTLING, Kunststoff-Taschenbuch, Carl Hanser, München (1979)

[35] WG. CROSS, A. ARNEJA, H. ING, Proc. 13th Conf. SSNTDs, Pergamon Press (1986), 649

[36] FIRMA AMERSHAM BUCHLER, Technisches Bulletin 76/7 (1976)

[37] E.D. ARNOLD, Neutron Sources, in: Engineering Compendium on Radiation Shielding, Vol. 1, Hrsg.: R.G. Jaeger E.P. Blizzard, A.B. Chilton, M. Grotenhuis, A. Honig, ThJ. Jaeger, H.H. Eisenlohr, Springer, Berlin Heidelberg New York (1968)

[38] B. WATT, Phys. Rev. 87 (1952) 1037

[39] A.B. SMITH, RR. FIELDS, J.H. ROBERTS, Phys. Rev, 108 (1957) 411

[40] S. WAGNER, Neutronen, in: Dosimetrie und Strahlenschutz Hrsg.: R.G. Jaeger, W Hübner, Georg Thieme, Stuttgart (1947)

[41] FIRMA AMERSHAM BUCHLER, Datenblatt 3.4.85

[42] M.N. THOMPSON, J.M. TAYLOR, Nucl. Instrum. Methods. 37 (1965) 305

[43] FIRMA AMERSHAM BUCHLER, Datenblatt 10.9.64

[44] M. COPPOLA, H.H. KNITTER, Kerntechnik 10 (1967) 459

[45] DR. S. GULDBAKKE, PTB Braunschweig, Mittig, v. 14.6.88

[46] DR. S. GULDBAKKE, PTB Braunschweig, Mittig, v. 9.11.88

[47] G. SOMOGYI, Radiat. Eff. 34 (1977) 51

[48] WG. CROSS, H. Ing, Radiat. Prot. Dosim. 10 (1985) 29

[49] CM. EISENHAUER, J.B. HUNT, R.B. Schwartz, Radiat. Prot. Dosim. 10 (1985) 43

[50] S. SCHEIB, Diplomarbeit, Gießen 1987

[51] G. SOMOGYI, I. HYNYADI, Proc. l0th Conf. SSNTDs, Pergamon Press (1980), 443

[52] H.G. PARETZKE, T.A. GRUHN, E.V. BENTON, Nucl. Instrum. Methods 107 (1973) 597

[53] H.A. KHAN, Nucl. Instrum. Methods 109 (1973) 515

[54] M. URBAN, B. BURGKHARDT, E. PIESCH, Proc. 12th Conf. SSNTDs, Pergamon Press (1984), 175

[55] J.H. ADAMS, L.P. BEAHM, Proc. 11th Conf. SSNTDs, Pergamon Press (1982), 163

[56] G. HEHN, Waffen mit verstärkter Strahlenwirkung-Strahlenfelder und Schutzmöglichkeiten, in: Zivilschutzforschung Band 19, Osang, Bonn (1989)

[57] M.A. EL-FIKI, G.M. HASSIB, M.A. SHARAF, M.A. FADEL, Proc. 13th Int. Conf. SSNTDs, Pergamon Press (1986), 665

ANHANG I

A.I Entstehung latenter Spuren

A.I.I Wechselwirkung geladener Teilchen mit Materie

Die physikalisch-chemischen Vorgänge, die zur Bildung einer latenten Spur beim Durchgang eines schweren, geladenen Teilchens durch Materie fuhren, sind sehr komplex. Ihre Analyse hat bisher nur allgemeine Vorstellungen und halbquantitative Modelle hervorgebracht. Im folgenden werden ausschließlich die Vorgänge in organischen Festkörpern betrachtet. Nach ALGER [8] lassen sich die Wechselwirkungsprozesse nach der Dauer ihrer Relaxationszeiten in drei Phasen einteilen:

Phase I: Energieabsorption

Anregung und Ionisation der Atome im bremsenden Medium leisten den Hauptbeitrag zur Absorption. In Ionisationsstößen wird etwa die Hälfte der Energie des Projektilions in kinetische Energie von Sekundärelektronen, den sogenannten <5-Elektronen, umgewandelt [9], Diese geben ihre Energie überwiegend in der Nähe der Primärteilchentrajektorie durch Ionisation und Anregung ab. Wie theoretische Untersuchungen zeigen, liegt die dort deponierte Energiedosis in der Größenordnung von 1—10 MGy [10]. Viele Polymere zeigen nach Elektronenbestrahlungen im MGy-Bereich eine Erhöhung der Löslichkeit in starken Laugen [11, 12]. Die Sekundärelektronen tragen daher in organischen Festkörpern wesentlich zur Bildung der latenten Spur bei. Liegt die Energie des Primärteilchens im Bereich zwischen 1 keV/Nucl. und 100 MeV/Nucl., können atomare Versetzungen und Kernreaktionen vernachlässigt werden.

Die Ionisations- und Anregungsvorgänge der Phase I spielen sich in einem Zeitraum von 10^{-15} s ab.

Phase II: Einstellung des thermischen Gleichgewichts

Die lokal absorbierte Energie wird u.a. durch Lumineszenz, Wärmeleitung und Diffusion von Atomen und Molekülen verteilt. Ein Teil bleibt als potentielle Energie in chemisch reaktiven Spezies wie angeregten Atomen und Molekülen, Ionenpaaren und freien Radikalen gespeichert, die als Folge der Prozesse in Phase I entstehen. Die Dauer dieser zweiten Phase liegt im Bereich von 10^{-12} bis 10^{-8} s.

Phase III: Einstellung des chemischen Gleichgewichts

Diese letzte Phase beginnt bei etwa 10^{-8} s und kann Jahre dauern. Die gespeicherte potentielle Energie wird durch verschiedene, von ihrer Aktivierungsenergie abhängige Rekombinationsprozesse verringert. Dabei entstehen thermisch stabile Verbindungen. Eine partielle Ausheilung des Strahlenschadens ist ebenso möglich wie eine Konservierung der latenten Spur durch chemische Reagenzien aus der Umgebung (O_2, O_3, H_2O) [13]. Durch Einfangen von Elektronen in Haftstellen und durch Stabilisierungseffekte, die Reaktionen von Ionen und Radikalen erschweren, kann die Relaxationszeit der Phase III erheblich verlängert werden.

Als Folge der oben geannten Prozesse hat das Material in der Umgebung der Teilchenbahn, im Bereich der „latenten Spur“ mit einem Durchmesser von etwa 10 nm, charakteristische Veränderungen erfahren:

- reduziertes Molekulargewicht durch Molekülkettenbrüche
- erhöhte Zahl von Kettenenden
- Anwesenheit chemisch reaktiver Substanzen

Diese Eigenschaften fuhren ab einem gewissen Schädigungsgrad zu einer erhöhten Löslichkeit in alkalischen Laugen. Durch „Ätzen“ wird das Material im geschädigten Volumen schneller als in der Umgebung abgetragen. Die Form der dabei entstehenden Ätzfigur hängt vom Detektormaterial und den Teilchen- und Ätzparametern ab.

Um quantitative Aussagen über den zur Bildung einer ätzbaren latenten Spur notwendigen Grad der Schädigung zu erhalten, sind eine Reihe von Spurbildungsmodellen vorgeschlagen worden.

A.I.2 Spurbildungsmodelle

Ein Spurbildungsmodell hat die Aufgabe, die Abhängigkeit der Spurregistrierung von den folgenden Parameterklassen vorherzusagen:

1. Materialparameter (Zusammensetzung, Dichte, u.a.)
2. Teilchenparameter (Ladung, Masse, Geschwindigkeit)
3. Umgebungseinflüsse (Temperatur, Atmosphäre)
4. Ätzparameter (Ätzmittel, Temperatur, Ätzzeit, u.a.)

Bis heute existiert kein umfassendes Modell der Spurbildung. Die vorgeschlagenen Modelle berücksichtigen nur die Teilchenparameter, dem Einfluß der übrigen Größen wird durch Einführung einer Anzahl (meist 1—2) an die experimentellen Daten anzupassenender freier Parameter Rechnung getragen.

Die quantitative Erfassung der Schädigung geht im allgemeinen vom Verlust der kinetischen Energie des Primärteilchens pro Wegelement, dem linearen Energieverlust (Linear Energy Transfer LET) aus:

$$LET = \frac{dE}{dx} \tag{15}$$

Eine ätzbare Spur wird dann gebildet, wenn der LET oder eine daraus abgeleitete Größe einen kritischen Wert überschreitet. Dieser Schwellwert wird als freier Parameter in das Modell eingeführt. (Eine neuere Definition des LET begrenzt den in Betracht kommenden Energieübertrag [ICRU 33] und entspricht weitgehend dem unten eingeführten Restricted Energy Loss REL).

Quantenmechanische Rechnungen zum Durchgang schneller, geladener Teilchen durch Materie wurden von BETHE [14] und BLOCH [15] durchgeführt. Nach BENTON [16] läßt sich der lineare Energieübertrag für ein Teilchen mit der Ladung z und der Geschwindigkeit v in der folgenden Form angeben:

$$\frac{dE}{dx} = \frac{n z_e^2 e^4}{8\pi\epsilon_0^2 \beta^2 m_0 c^2} \left(\ln \frac{2 m_0 c^2 \beta^2 w_{max}}{I^2(1-\beta^2)} - 2\beta^2 - 2C/Z - \delta\right) \tag{16}$$

darin bedeuten:

- n: Elektronendichte im Bremsmedium
- z_e: effektive Ladung des Projektilions
- e: Elektrische Elementarladung $= 1.602 \cdot 10^{-19}$ c
- ϵ_0: elektrische Feldkonstante $= 8.854 \cdot 10^{-12}$ Fm^{-1}
- β: v/c; c = Vakuum-Lichtgeschwindigkeit
- m_0c^2: Ruheenergie des Elektrons
- I: mittleres Anregungspotential der Atome im Material
- w_{max}: maximale Sekundärelektronenenergie
- C/Z: Schalenkorrekturterm
- δ: Dichteeffekt-Korrektur bei relativistischer Ionengeschwindigkeit

Der LET wird üblicherweise in keV/μm angegeben. Häufig wird der LET durch die Massendichte dividiert und in der Einheit [$MeV \cdot cm^2 g^{-1}$] angegeben. Das Massenbremsvermögen ist weitgehend unabhängig von der Ordnungszahl des Wechselwirkungsmaterials.

Die Korrekturterme C/Z und δ berücksichtigen die Nichtteilnahme der Elektronen der inneren Schalen bei kleinen Geschwindigkeiten (Orbitalgeschwindigkeit der Elektronen) sowie Polarisationseffekte bei relativistischen Ionengeschwindigkeiten ($\sim$1 GeV/Nucl.).

Die effektive Ionenladung z_e wird berechnet aus [16]:

$$z_e = z \cdot \left(1 - \exp \frac{125\beta}{z^{2/3}}\right) \tag{17}$$

Darin ist die Verringerung der Ionenladung durch Elektroneneinfang berücksichtigt. Die Gleichung (17) basiert auf den experimentellen Daten

von HECKMAN für Kernspuremulsionen [17], kann aber auch für polymere Festkörper verwendet werden, solange die spurerzeugenden Teilchen keine schweren, langsamen Ionen sind.

Die Reichweite eines Ions mit der Anfangsenergie E_0 ergibt sich aus dem diffentiellen Energieverlust Gl. (15) nach:

$$R=\int_0^{E_0} \frac{dE}{-(dE/dx)} \tag{18}$$

BARKAS und BERGER [17] berechneten die Reichweiten schwerer Ionen durch Skalierung der Protonenreichweite:

$$R(\beta)=\frac{M}{z^2}\,[l(\beta)+B_z(\beta)] \tag{19}$$

mit

M,z: Masse, Ladung des Ions in Einheiten der Protonmasse, -ladung
$l(\beta)$: Reichweite eines „idealen" Protons mit der Geschwindigkeit $\beta \cdot c$
$B_z(\beta)$: berücksichtigt Vergrößerung der Reichweite eines positiven Ions der Ladung $z \cdot e$ durch Elektroneneinfang

$l(\beta)$ und $B_z(\beta)$ werden in Mol Elektronen pro cm^2, $R(\beta)$ in $g \cdot cm^{-2}$ angegeben.

Das „ideale" Proton fängt kein Elektron ein und wechselwirkt nicht mit Kernen. Die Reichweite des realen Protons, $R(\beta)=l(\beta)+B_1(\beta)$, unterscheidet sich kaum von $l(\beta)$.

$l(\beta)$ und $B_z(\beta)$ sind Funktionen der Materialparameter Kernladungszahl Z, Ordnungszahl A, Anregungspotential I und der Protonenenergie E. Grundlage ihrer Berechnung sind Energie-Reichweite-Daten für Protonen, an die eine empirische $l(\beta)$-Kurve angepaßt wird, sowie $B_z(\beta)$-Daten für Kernspuremulsionen. BENTON und HENKE [18] erweiterten den von BARKAS und BERGER betrachteten Energiebereich (1–1200 MeV/Nucl.) auf Werte < 1 MeV/Nucl. und veröffentlichten auch ein Programm zur Berechnung von Reichweite und LET (bzw. REL, s.u.) [19].

Die BETHE-BLOCH-Gleichung (16) ist Grundlage der meisten Spurbildungsmodelle. Zunächst liegt es nahe, das Überschreiten eines Schwellwertes $(LET)_{crit}$ als Spurbildungskriterium zu wählen. Die Ergebnisse aus Experimenten mit schnellen, schweren Ionen widersprechen jedoch diesem Ansatz [11, 20], da ein erheblicher Anteil des Energieverlustes dieser Teilchen von der Erzeugung hochenergetischer (> 1 keV) Sekundärelektronen herrührt, die ihre Energie in größerer Entfernung von der Primärteilchenbahn deponieren und damit nicht wesentlich zur Spurbildung beitragen. Um diesem Effekt Rechnung zu tragen, schlug BENTON das

Modell des eingeschränkten Energieverlustes (Restricted Energy Loss REL) vor [16]. Hier werden nur Ion-Elektron-Stöße mit großen Stoßparametern berücksichtigt, die niederenergetische δ-Elektronen erzeugen. Als zweiter freier Parameter wird neben dem kritischen REL eine Grenzenergie w_0 der Sekundärelektronen eingeführt. Ein Ausdruck zur Berechnung des REL ergibt sich dann durch Aufspaltung der Gleichung (16):

$$REL=\left(\frac{dE}{dx}\right)\Bigg|_{w<w_0}=\frac{nz_e^2e^4}{8\pi\epsilon_0^2\beta^2m_0c^2}\left(\ln\frac{2m_0c^2\beta^2w_{max}}{I^2(1-\beta^2)}-\beta^2-2C/Z-\delta\right) \quad (20a)$$

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)\Bigg|_{w>w_0}=\frac{nz_e^2e^4}{8\pi\epsilon_0^2\beta^2m_0c^2}\left(\ln\frac{w_{max}}{w_0}-\beta^2\right) \quad (20b)$$

Der Anteil (20b) beschreibt den Energieverlust durch hochenergetische δ-Elektronen, der im REL-Modell ignoriert wird. Die Grenzenergie w_0 hängt von der Zusammensetzung des Detektormaterials ab, typische Werte liegen im Bereich 200 eV-1000 eV.

Neben dem REL-Modell existieren noch andere Spurbildungsmodelle. Ihre Unterschiede liegen u.a. in der Gewichtung der Anteile der Primärionisation und der Sekundärelektronen an der Schädigung des Festkörpers. Trotz verschiedener Annahmen ergeben sich keine auffälligen Differenzen in den quantitativen Aussagen, da die in jedem Fall in die Modelle eingehenden freien Parameter an die experimentellen Daten angepaßt werden müssen.

A.I.3 Wechselwirkung von Neutronen mit Materie

Als ungeladenes Teilchen nimmt das Neutron nur über sein magnetisches Moment (μ_n= -6.02 $\cdot 10^{-8}$ eV/T) an der elektromagnetischen Wechselwirkung teil. Die Wechselwirkungsenergie reicht weder zur Anregung noch zur Ionisation aus. Dagegen werden bei der starken Wechselwirkung von Neutronen mit Atomkernen geladene Teilchen freigesetzt, die dann in der oben beschriebenen Weise im Festkörper latente Spuren induzieren können.

Die für die Festkörperdosimetrie mit Kernspurdetektoren wichtigen Prozesse sind [21]:

a) Elastische Streuung

Das Neutron überträgt einen Teil seiner Energie auf den Zielkern, der sich dabei als Rückstoßkern aus dem Molekülverband löst. Es findet keine Kernanregung statt. Der getroffene Kern erhält die kinetische Energie (Laborsystem):

$$E_t = E_n \cdot \frac{4 M_a M_n}{(M_a + M_n)^2} \cos^2 \Phi \tag{21}$$

mit:

E_n, M_n: Neutronenenergie, -masse

M_a: Masse des Rückstoßkerns (R-Kern)

Φ: Winkel zwischen Bahn des R-Kerns und n-Einfallsrichtung

Die bei einem Stoß im Mittel übertragene Energie ist dann:

$$\langle E_t \rangle = E_n \cdot \frac{2 M_a M_n}{(M_a + M_n)^2} \tag{22}$$

Für die in polymeren Kernspurdetektoren sowie auch im menschlichen Gewebe häufigsten Elemente H, C, O, N ergeben sich folgende Verhältnisse:

	$\langle E_t \rangle / E_n$
H:	0.500
C:	0.142
O:	0.111
N:	0.124

Die totalen Wirkungsquerschnitte für elastische Neutronenstreuung liegen bei diesen Elementen in der Größenordnung von 1 barn [21]. Für $E_n < 14$ MeV ist der differentielle (n, p)-Querschnitt isotrop im Schwerpunktsystem [21]. Im Laborsystem gilt daher:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} \sim \cos \Phi \tag{23}$$

Für $M_a > M_n$ geht die Isotropie verloren. Im Laborsystem werden die Rückstoßkerne dann noch stärker in Vorwärtsrichtung gestreut. Für (n, C)- und (n, O)-Querschnitte kann folgende Beziehung verwendet werden [22]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} \sim \cos^2 \Phi \tag{24}$$

Die in Polymeren enthaltenen Wasserstoffkerne übernehmen durch elastische Stöße den größten Teil der Neutronenenergie. Ihr Nachweis mittels der Kernspurätztechnik erfordert jedoch spezielles Detektormaterial mit kleinem REL-Schwellwert (z.B. CR-39 [23]). C- und O- Rückstoßkerne werden dagegen von den meisten Polymeren registriert [11, 16].

b) Nichtelastische Streuung (Kernreaktionen)

Bei der nichtelastischen Streuung dringt ein schnelles Neutron in den Kern ein. Ein Teil seiner kinetischen Energie und der Bindungsenergie wird auf kleine Nukleonenverbände (Meist H-Isotope und α-Teilchen) übertragen, die dann vom Kern emittiert werden. In der Regel setzen diese Reaktionen erst oberhalb einer Schwellenenergie (E_S>1 MeV) ein. Die Wirkungsquerschnitte liegen etwa eine Größenordnung unterhalb der elastischen Querschnitte.

Die bei der nichtelastischen Streuung sowie beim Einfang langsamer Neutronen enstehende Gamma-Relaxationsstrahlung beeinflußt erst bei großen Dosen (>5 kGy) das Nachweisverhalten von Kernspurätzdetektoren [24].

Anhang II

A.II Neutronenquellen

A.II.1 Radionuklidquellen

Radioaktive Neutronenquellen bestehen aus einem Alpha- oder Gamma-Emitter und einem Targetelement, in dem über (α, n)- oder *(γ, n)*-Reaktionen Neutronen erzeugt werden. Spaltneutronenquellen setzen Neutronen durch Spontanspaltung von Transuranen (Cm, Cf) frei. Die Neutronenemission wird praktisch immer von einer Gamma-Relaxationsstrahlung begleitet. Kenngrößen der Radionuklidquellen sind Neutronenquellstärke, mittlere Neutronenenergie und Halbwertzeit. Für die vorliegenden Untersuchungen wurden eine Californium-252 Spaltneutronenquelle und eine Americium-Beryllium (α, n) Quelle verwendet.

A.II.1.1 Cf-252 Quelle

Californium-252 zerfällt über α-Emission (96.9%) und spontane Spaltung (3.1%) [36], bei der im Mittel 3.8 Neutronen frei werden [37]. Die Halbwertszeit für Spontanspaltung beträgt 85 Jahre [37], der dominierende α-Zerfall führt zu einer effektiven Halbwertszeit von 2.65 Jahren [36]. Das Energiespektrum der Neutronen ist dem Spaltspektrum von Uran-235 ähnlich und kann durch die WATT-Formel beschrieben werden [38]:

$$N(E)=a\ \exp(-b\ E)\ \sinh(c\ E)^{1/2} \qquad (25)$$

E: Neutronenenergie in MeV
N(E): Zahl der Neutronen mit Energie E pro 1 MeV
a, b, c: Parameter

SMITH et al. geben als beste Anpassung an das Cf-Spektrum b=(0.88±0.05)/MeV und c=(2.0±0.2)/MeV an [39]. Die mittlere Energie der emittierten Neutronen beträgt 2.13 MeV [40].

Für diese Untersuchungen wurde eine Quelle benutzt, die 10 *μg* Californiumoxid enthält, welches in einem doppelwandigen Stahlzylinder von 10 mm Höhe und 7.8 mm Durchmesser eingeschlossen ist. Die Quellstärke betrug am 19.3.85 2.46 10^7 n/s [41]. Aufgrund der relativ kleinen Halbwertszeit von Cf-252 ist die Abnahme der Quellstärke während des Untersuchungszeitraumes zu berücksichtigen (Kap. A.II.1.3).

A.II.1.2 Am-Be (α, n) Quelle

Americium-241 ist ein reiner Alphastrahler, der mit einer Halbwertszeit von 458 Jahren zerfällt [37]. Über die exotherme Reaktion $^{9}Be(\alpha, n)^{12}C$ (Q=5.82 MeV) werden Neutronen mit Energien bis etwa 11 MeV freigesetzt. Die mittlere Neutronenenergie liegt bei 3.9 MeV [40]. Das Energiespektrum ist komplizierter als das Cf-Spaltspektrum; dominierend sind zwei Peaks bei 3.3 MeV und 5.5 MeV [42].

Die verwendete Am-Be Quelle enthält ein Gemisch aus Americiumoxid und Berylliummetallpulver im Stahlzylinder mit Bleimantel zur Abschirmung der Gammastrahlung. Am 19.8.64 betrug die Quellstärke $8.2 \cdot 10^6$ n/s [43]. Die Zusammensetzung aus einem Pulvergemisch hat eine schlechte Reproduzierbarkeit der Quelle zur Folge. Erschütterungen beim Transport können bereits die Neutronenausbeute verändern.

A.II.1.3 Berechnung der Neutronenfluenz

Die Aktivität A einer radioaktiven Substanz nimmt analog zum Zerfallsgesetz exponentiell ab:

$$A(t)=A_0 \cdot \exp(-\Gamma \cdot t)$$

mit:

A_0: Anfangsaktivität für t=0 (Kalibrierzeitpunkt)

Γ : Zerfallskonstante $\Gamma = \ln 2 / T_{1/2}$; $T_{1/2}$=Halbwertszeit

Die Neutronenquellstärke B ist proportional zur Aktivität:

$$B(t)=k \cdot A(t)=B_0 \cdot \exp(-\Gamma \cdot t);\ B_0=k \cdot A_0$$

Die Anzahl n der im Zeitraum (t_1, t_2) emittierten Neutronen ergibt sich durch Integration der Quellstärke:

$$n=\int_{t_1}^{t_2} B(t)\ dt=\frac{B_0}{\Gamma}(\exp[-\Gamma \cdot t_1]-\exp[-\Gamma \cdot t_2])$$

$$=B_0 \cdot \exp(-\Gamma \cdot t_1) \cdot \frac{1-\exp(-\Gamma \cdot t)}{\Gamma} \qquad ;\ t=t_2-t_1$$

Die Fluenz im Abstand r von der Quelle ist:

$$F=\frac{n}{4\pi r^2}=B_0 \cdot \exp(-\Gamma \cdot t_1) \cdot \frac{1-\exp(-\Gamma \cdot t)}{4\pi \Gamma \cdot r^2} \tag{26}$$

Ist die Bestrahlungsdauer t wesentlich kleiner als die Halbwertzeit, d.h. $\Gamma \cdot t \gg 1$, vereinfacht sich Gl. (26) zu:

$$F=B_0 \cdot \frac{\exp\ (-\Gamma \cdot t_1)}{4\pi r^2} \cdot t \tag{27}$$

Exakt gilt dieses Ergebnis nur für Punktquellen und bei vernachlässigbarer Streuung der Neutronen an Luft und Wänden.

In Tabelle 6 sind die relevanten Quellendaten zusammengestellt.

Tabelle 6: Daten für Cf-252 und Am-Be Quelle

	Cf-252	Am-Be
Anfangsquellstärke B_0 [s^{-1}]	$2.46 \cdot 10^7$	$8.2 \cdot 10^6$
gemessen am	19.3.1985	19.8.1964
Zerfallskonstante Γ [a^{-1}]	0.2616	$1.513 \cdot 10^{-3}$

A.II.2 Neutronengeneratoren

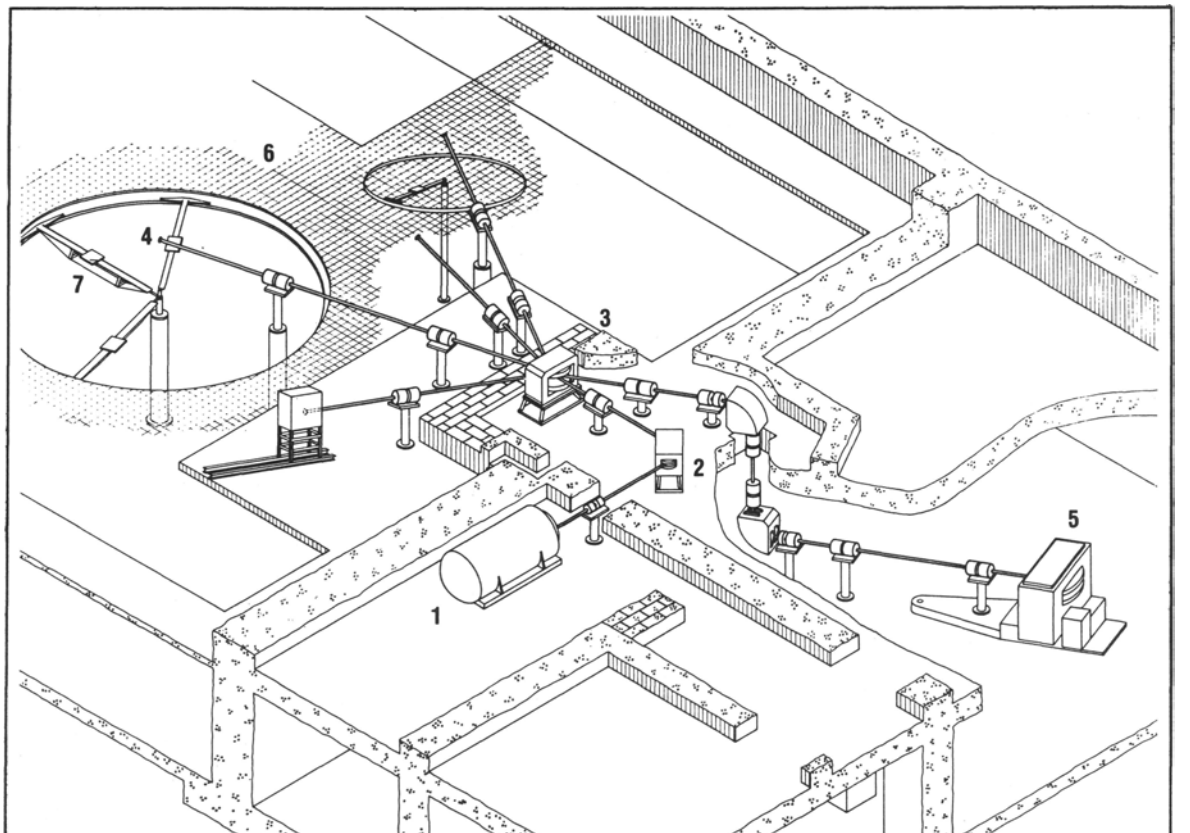
Ionenbeschleuniger werden unter Ausnutzung von (p,n)-, (d,n)- und *(a,* n)-Reaktionen als Neutronengeneratoren zur Erzeugung monoenergetischer Neutronen eingesetzt. Die Energie der aus dem Target emittierten Neutronen hängt von der Ionenenergie bzw. Beschleunigungsspannung, der Energietönung Q der Reaktion und dem Emissionswinkel relativ zur Strahlrichtung ab [44].

Für die Untersuchungen zur Energie- und Winkelabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit (Kap. 6.2) wurden Bestrahlungen am Neutronengenerator der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt in Braunschweig, Abteilung Neutronendosimetrie, durchgeführt. Die Bestrahlungseinrichtung besteht aus einem 3.75 MeV Van-de-Graaff Generator im Drucktank (1), dem Strahlführungssystem mit Umlenk- (2) und Verteilermagneten (3) und dem Target am Ende des Strahlrohrs (4) (Abb. 19). Als Quelle beschleunigter Ionen steht außerdem ein 24 MeV Zyklotron (5) zur Verfügung. In der weiträumigen Experimentierhalle (30 m X 25 m X 14 m L X B X H) mit dem Gitterboden (6) können die Bestrahlungen in einer rückstreuarmen Umgebung durchgeführt werden. Detektoren oder Meßgeräte werden auf schwenkbaren Stegen (7) angebracht.

Die Bestrahlungen wurden mit Neutronen im Energiebereich von 0.56 MeV bis 14.8 MeV durchgeführt. Tabelle 7 gibt für jede Energie die neutronenerzeugende Reaktion, den Q-Wert der Reaktion und die Primärenergie der Ionen an [44].

Tabelle 7: Neutronenenergien

$E_n(0°)$ [MeV]	Reaktion	Q-Wert [MeV]	Primärenergie [MeV]
0.565	$^7Li(p,n)^7Be$	− 1.644	2.293
1.200	$^3H(p,n)^3He$	− 0.764	1.997
2.500	$^3H(p,n)^3He$	− 0.764	3.281
5.000	$^2H(d,n)^3He$	+ 3.268	1.774
14.800	$^3H(d,n)^4He$	+17.588	0.111



S!

Abb. 19 Neutronengeneratoren und Bestrahlungshalle der PTB, Braunschweig

Die Autoren

Lommler, Burkhard, Dipl. Phys., **Pitt, Eberhard, Dr.** rer. nat., **Scharmann, Arthur,** Prof. Dr. rer. nat., **Simmer, Rolf,** Dipl. Phys.

1. Physikalisches Institut der Justus-Liebig-Universität
Heinrich-Buff-Ring 16,
6300 Gießen