Considérations sur la réponse en énergie des neutrons et les effets du temps séparant l'irradiation du développement des émulsions Kodak NTA, type A

CONSÉQUENCES SUR L'UTILISATION DE CES ÉMULSIONS
POUR LA DOSIMÉTRIE AUPRÈS DES ACCÉLÉRATEURS

J. C. BROCHEN (*), F. BERMANN (**),
J. DROUET (*), H. VIALETES (*)

(Manuscrit reçu le 23 septembre 1976)

RÉSUMÉ

Nous avons déterminé la réponse des émulsions Kodak NTA, type A, aux neutrons émis par des sources radioactives et mesuré l'importance du fading pour connaître leur limite d'utilisation pour la dosimétrie des neutrons auprès des accélérateurs.

Des films ont été exposés auprès de sources de neutrons d'énergie variable et développés à des temps allant de 1 jour à 3 mois après la fin de l'irradiation. Les résultats montrent que pour les émulsions Kodak NTA, type A, étalonnées avec les neutrons d'une source Pu-Be, le rapport de l'équivalent de dose lu à l'équivalent de dose réel est de 0,2 pour les neutrons de basse énergie (0,450 MeV) et de 1,4 pour des neutrons de 14 MeV.

(*) Commissariat à l'Énergie atomique, Service de Protection contre les Rayonnements, Section de Radioprotection des Installations, Centre d'Études nucléaires de Saclay, B.P. n° 2, 91190 Gif-sur-Yvette.

(**) Commissariat à l'Énergie atomique, Département de Protection, Service Technique d'Études de Protection, Section Technique d'Instrumentation et de Dosimétrie, B.P. n° 6, 92260 Fontenay-aux-Roses.

En ce qui concerne le fading, on observe que ce phénomène est d'autant plus important que l'énergie moyenne des neutrons est faible. La décroissance en fonction du temps, pour les neutrons d'une source de Pu-Be, est de l'ordre de 12 p. cent au bout de 1 mois, de 40 p. cent au bout de 2 mois et de 70 p. cent au bout de 3 mois, alors que la décroissance est respectivement de 40, 60 et 80 p. cent pour les neutrons d'une source Am-Li.

ABSTRACT

In order to determine how far Kodak NTA type A emulsions can be used for neutron dosimetry around accelerators, the response of the emulsions and the importance of fading have been studied. Films have been exposed to sources of neutrons of variable energy and developed at periods varying from 1 day to 3 months after the end of the irradiation. The results show that for the Kodak NTA type A film, calibrated with neutrons from a Pu-Be source, the ratio between the measured dose equivalent and the theoretical dose equivalent is 0.2 for low energy neutrons (0.450 MeV) and 1.4 for 14 MeV neutrons. It can be observed that fading is all the more important as the average energy of the neutrons is weaker. The decrease of reading vs time for the neutrons from a Pu-Be source is about 12 p. cent after 1 month, 40 p. cent after 2 months and 70 p. cent after 3 months whereas the decrease is 40, 60 and 80 p. cent respectively for the neutrons from an Am-Li source.

I. — INTRODUCTION

A l'extérieur des protections des accélérateurs, la dosimétrie de zone est assurée par des postes de détection équipés, soit de compteurs proportionnels à protons de recul du type DNR, soit de compteurs proportionnels à BF_3 , permettant d'évaluer les équivalents de dose dus aux neutrons. Cette dosimétrie en réponse *dynamique* est complétée par une dosimétrie en réponse *statique* effectuée à l'aide de films Kodak NTA. Jusqu'en 1973, auprès de l'accélérateur Saturne, synchrotron à protons de 3 GeV, les films étaient mis en place et relevés mensuellement. Le faible niveau des rayonnements dus aux neutrons à l'extérieur des protections et la sous-estimation des équivalents de dose évalués par les films pour les composantes de basse énergie [1], faisaient apparaître, suivant le type de fonctionnement de l'accélérateur Saturne, des résultats inférieurs à la limite de sensibilité du film, soit 40 mrem. Cette situation a été considérée comme inconfortable, car elle ne permettait, ni de chiffrer avec précision les équivalents de dose dans l'installation, ni de comparer la valeur obtenue avec l'intégrale des réponses *en dynamique*.

Afin d'obtenir des équivalents de dose intégrés supérieurs à cette valeur limite, il a été envisagé de remplacer les films mensuels par des films trimestriels. Avant le remplacement définitif, nous avons cherché à déterminer l'importance du fading pour connaître la sous-estimation des résultats fournis par des films trimestriels par rapport à ceux fournis par des films mensuels.

II. — EXPÉRIENCES

Trois expériences ont été faites :

2.1. Détermination du fading des émulsions Kodak NTA, type A, irradiées par les rayonnements émis par les sources radioactives $^{239}\text{Pu-Be}$, ^{252}Cf , $^{241}\text{Am-Li}$. Pour cela, seize films NTA ont été exposés à une source donnée; ils ont été développés par lots de quatre films, respectivement 5 jours, 1 mois, 2 mois et 4 mois après la fin de l'irradiation.

2.2. Détermination du fading des émulsions Kodak NTA, type A, irradiées par les rayonnements neutroniques à l'extérieur des blindages de l'accélérateur Saturne. Pour cela, douze films ont été exposés durant 42 heures et ont été développés par lots de trois, respectivement 1 jour, 1 mois, 2 mois et 3 mois, après la fin de l'irradiation.

2.3. Comparaison des résultats fournis par des films trimestriels à ceux fournis par des films mensuels. Pour cela, dix postes de détection susceptibles d'enregistrer des équivalents de dose mensuels de 100 mrem ont été choisis. En plus du film trimestriel, on a mis en place, sur chaque poste de détection, une série de trois films mensuels retirés à la fin du premier mois et remplacés par une autre série de trois films mensuels retirés à la fin du deuxième mois et suivis d'une troisième série de trois films mensuels retirés avec les films trimestriels, à la fin du troisième mois. Cette expérience a été suivie pendant trois trimestres consécutifs.

Tous les films utilisés dans les trois expériences sont mis sous emballage plastique étanche, après dessèchement pendant 5 jours dans une atmosphère d'azote à 10 p. cent d'humidité. Ils ont été étalonnés à l'aide des neutrons émis par une source Pu-Be. La lecture des traces a été faite au microscope sur 1 cm balayé par un champ de diamètre 150 μm . La correspondance entre la densité des traces et l'équivalent de dose est de 20 000 traces par centimètre carré pour 1 rem, délivré par les neutrons de la source étalonnée de Pu-Be. L'exploitation a été faite dans les conditions normales habituelles. Les films ont été stockés à la température ambiante sans précautions particulières.

III. — RÉSULTATS

3.1. FILMS EXPOSÉS AUX SOURCES RADIOACTIVES

Les équivalents de dose réels dus aux neutrons subis par les émulsions NTA sont de 1 000 mrem pour les émulsions exposées aux sources $^{239}\text{Pu-Be}$ et ^{252}Cf et de 270 mrem pour les émulsions exposées à la source $^{241}\text{Am-Li}$.

Les équivalents de dose réels ont été calculés en prenant :

pour la source de Pu-Be : $3,52 \cdot 10^{-5}$ mrem pour une fluence de 1 n/cm^2 [2];

pour la source de ^{252}Cf : $3,50 \cdot 10^{-5}$ mrem pour une fluence de 1 n/cm^2 [3];

pour la source de Am-Li : $2,15 \cdot 10^{-5}$ mrem pour une fluence de 1 n/cm^2 .

Le facteur de conversion *fluence de neutrons-équivalent de dose* pour la source Am-Li a été calculé à partir du spectre d'énergie des neutrons trouvé par HESS [4].

Les résultats de lecture, exprimés en mrem, des films Kodak NTA sont indiqués dans le tableau I sous la forme

$$\bar{x} \pm \frac{2\sigma}{\sqrt{N}} \quad \text{où} \quad \bar{x} = \sum_{i=1}^N \frac{x_i}{N}$$

et

σ = écart-type;

x_i = équivalent de dose lu sur le film i .

TABLEAU I

Intervalle de temps séparant l'irradiation et le développement (jours)	Equivalent de dose lu (mrem)		
	Source Pu-Be	Source ^{252}Cf	Source Am-Li
5	1 132 $\pm$ 29	445 $\pm$ 25	59 $\pm$ 10
35	992 $\pm$ 32	376 $\pm$ 26	37 $\pm$ 8
65	677 $\pm$ 46	257 $\pm$ 21	28 $\pm$ 8
95	300 $\pm$ 74	131 $\pm$ 21	11 $\pm$ 2

Toutes les émulsions n'ayant pas subi le même équivalent de dose, il est intéressant de calculer le rapport de l'équivalent de dose lu à l'équivalent de dose réel pour les différentes sources de neutrons et pour un étalonnage avec une source de Pu-Be. Les rapports, appelés rendements des émulsions NTA, sont indiqués dans le tableau II.

TABLEAU II

Temps séparant l'irradiation du développement (jours)	Equivalent de dose lu/ équivalent de dose réel		
	Pu-Be	^{252}Cf	Am-Li
5	1,13 $\pm$ 0,03	0,44 $\pm$ 0,03	0,22 $\pm$ 0,04
35	0,99 $\pm$ 0,03	0,37 $\pm$ 0,03	0,14 $\pm$ 0,03
65	0,67 $\pm$ 0,02	0,26 $\pm$ 0,02	0,10 $\pm$ 0,03
95	0,30 $\pm$ 0,07	0,13 $\pm$ 0,02	0,04 $\pm$ 0,008

3.1.1. Réponse des dosimètres NTA en fonction de la source de neutrons

Les résultats des films développés peu de temps après l'irradiation montrent que, dans les conditions ordinaires d'exploitation, une irradiation avec des

FIG. 1. — Réponse des films NTA en fonction de l'énergie des neutrons. Développement dès la fin de l'irradiation. Étalonnage effectué avec une source de PuBe.

neutrons de même spectre que la source d'étalonnage est mesurée avec un rendement de 100 p. cent, tandis qu'une irradiation par des neutrons d'une source de ^{252}Cf ou d'une source Am-Li ne sont mesurés qu'avec des rendements de 44 et 22 p. cent. Sur la figure 1, nous avons porté ces valeurs de rendement en fonction de l'énergie des neutrons. A titre de comparaison, nous indiquons

FIG. 2. — Fading des émulsions Kodak NTA exposées à des sources de neutrons rapides.

également les rapports entre l'équivalent de dose lu et l'équivalent de dose réel mesurés avec les mêmes émulsions par le Laboratoire de Photométrie du Département de Protection à Fontenay-aux-Roses, lors des intercomparaisons organisées par Euratom en 1971. Les résultats obtenus par la moyenne des participants à ces intercomparaisons sont également indiqués; les neutrons étaient produits par réaction nucléaire auprès d'un accélérateur Van de Graaff de 3 MeV.

On constate que les dosimètres ont un rendement de 20 p. cent pour les neutrons de basse énergie alors qu'ils surestiment l'équivalent de dose d'un facteur 1,4 pour les neutrons de 14 MeV.

Il est évidemment possible, si on connaît la source de neutrons, de corriger la lecture interprétée d'après l'étalonnage avec une source Pu-Be en utilisant les coefficients de la figure 2. Compte tenu de ces résultats, il est important de connaître l'énergie moyenne des neutrons autour d'un accélérateur et de corriger la lecture donnée par les films par le coefficient correspondant à cette énergie moyenne.

3.1.2. Effet du temps séparant l'irradiation du développement

Pour éliminer l'influence du spectre des neutrons et mettre en évidence l'effet du temps séparant l'irradiation du développement, nous présentons (tableau III et fig. 2) le fading relatif, c'est-à-dire les résultats normalisés en prenant pour unité le résultat de la lecture faite sur les films développés cinq jours après l'irradiation (les résultats pour les films irradiés auprès de Saturne sont tirés du paragraphe 3.2.1).

TABLEAU III

Temps séparant l'irradiation du développement (jours)	Fading relatif			
	Pu-Be	^{252}Cf	Am-Li	Saturne
5	1 $\pm$ 0,025	1 $\pm$ 0,055	1 $\pm$ 0,16	1 $\pm$ 0,05
35	0,876 $\pm$ 0,036	0,844 $\pm$ 0,076	0,626 $\pm$ 0,174	0,478 $\pm$ 0,022
65	0,598 $\pm$ 0,043	0,577 $\pm$ 0,057	0,466 $\pm$ 0,157	0,375 $\pm$ 0,015
95	0,26 $\pm$ 0,06	0,294 $\pm$ 0,049	0,183 $\pm$ 0,045	0,23 $\pm$ 0,07

La décroissance en fonction du temps est de l'ordre de 12 p. cent au bout de 1 mois, de 40 p. cent au bout de 2 mois et de 70 p. cent au bout de 3 mois pour les films exposés à la source Pu-Be. Les résultats sont du même ordre pour les films exposés à la source de ^{252}Cf . Par contre, la décroissance en fonction du temps est beaucoup plus rapide pour la source Am-Li. Pour les neutrons de cette

source, d'énergie moyenne 0,4 MeV, les traces de protons de recul dans l'émulsion sont très courtes et deviennent très vite difficiles à distinguer des grains d'argent du voile de fond.

Le raccourcissement des traces et la diminution de leur nombre expliquent la limitation du film aux neutrons de basse énergie et également l'amplitude des barres d'erreur apparaissant sur la figure 2.

3.2. FILMS EXPOSÉS AUPRÈS DE L'ACCÉLÉRATEUR SATURNE

3.2.1. *Effet du temps séparant l'irradiation du développement*

Les résultats de lecture des films irradiés par les neutrons autour de l'accélérateur, pendant 42 heures, sont indiqués dans le tableau IV :

TABLEAU IV

Temps séparant l'irradiation du développement (jours)	Equivalent de dose lu (mrem)
1	1 370 $\pm$ 70
30	650 $\pm$ 50
60	510 $\pm$ 30
90	330 $\pm$ 90

Les résultats, normalisés en prenant pour unité l'équivalent de dose lu tout de suite après irradiation, ont été portés dans le tableau III et sur la figure 2. On constate que la décroissance, en fonction du temps, est respectivement de 50, 62 et 80 p. cent pour des films développés 1 mois, 2 mois et 3 mois après irradiation.

Compte tenu des résultats obtenus par ailleurs sur les spectres de neutrons d'autres accélérateurs [2], on peut s'attendre à une situation analogue dans ces installations.

3.2.2. *Comparaison des résultats fournis par des films trimestriels à ceux fournis par des films mensuels*

Nous cherchons à comparer le résultat des films trimestriels avec le résultat des films mensuels, ces derniers étant développés à des intervalles de temps différents après leur exposition.

Le tableau V montre, pour un trimestre, le détail des opérations effectuées pour un poste de détection.

TABLEAU V

1er mois			2ème mois			3ème mois		
<ul style="list-style-type: none"> - <i>Début du mois</i> Mise en place des films trimestriels et des films mensuels 1-2-3 - <i>Fin du 1er mois</i> Ramassage des films 1-2-3 			<ul style="list-style-type: none"> - <i>Début du 2ème mois</i> Mise en place des films mensuels 4-5-6 - <i>Fin du 2ème mois</i> Ramassage des films 4-5-6 			<ul style="list-style-type: none"> - <i>Début du 3ème mois</i> Mise en place des films mensuels 7-8-9 - <i>Fin du 3ème mois</i> Ramassage des films trimestriels et des films 7-8-9 		
<i>Film 1</i>	<i>Film 2</i>	<i>Film 3</i>	<i>Film 4</i>	<i>Film 5</i>	<i>Film 6</i>	<i>Film 7</i>	<i>Film 8</i>	<i>Film 9</i>
développé à la fin du 1er mois du 1er trimestre	développé à la fin du 2è mois du 1er trimestre	développé à la fin du 3è mois du 1er trimestre	développé à la fin du 2è mois du 1er trimestre	développé à la fin du 3è mois du 1er trimestre	développé à la fin du 1er mois du 2è trimestre	développé à la fin du 3è mois du 1er trimestre	développé à la fin du 1er mois du 2è trimestre	développé à la fin du 2è mois du 2è trimestre

Le film trimestriel est développé à la fin du troisième mois avec le film 7.

Les résultats ci-dessous représentent la moyenne des résultats obtenus sur les dix postes de détection et pour les trois trimestres, soit la moyenne de trente résultats.

On trouve :

$$\frac{\text{Somme équivalents de dose lus sur les films 1, 4 et 7}}{\text{Équivalent de dose lu sur le film trimestriel}} = 2,2 \pm 0,4.$$

Ce rapport montre directement que la valeur donnée par le film trimestriel entraîne une sous-estimation de l'équivalent de dose d'un facteur supérieur à 2 par rapport à la valeur que l'on aurait obtenue avec des films mensuels.

D'autre part, on peut chercher à comparer la somme des équivalents de dose indiqués par les films mensuels 3, 5 et 7 à l'équivalent de dose trimestriel. Ces films mensuels sont développés en même temps que le film trimestriel et la somme des équivalents de dose reçus correspond à l'équivalent de dose reçu par le film trimestriel :

$$\frac{\text{Somme des équivalents de dose lus sur les films 3, 5 et 7}}{\text{Équivalent de dose lu sur le film trimestriel}} = 1,00 \pm 0,14.$$

Ce résultat confirme que les films mensuels ont subi le même effet de fading que le film trimestriel.

De plus, on a trouvé :

Rapport des équivalents de dose des films (1/2), (4/5) et (7/8) = $2,3 \pm 0,4$ et rapport des équivalents de dose des films (1/3), (4/6) et (7/9) = $3,6 \pm 0,8$.

Ceci montre qu'un film retardataire de 1 mois sous-estimerait l'équivalent de dose reçu d'un facteur 2,3 en moyenne et qu'un film retardataire de 2 mois sous-estimerait l'équivalent de dose d'un facteur 3,6 en moyenne.

IV. — CONCLUSIONS

4.1. La réponse des films NTA, type A, dépend fortement de l'énergie des neutrons.

4.2. Le fading des films NTA, type A, sous emballage étanche, n'est pas aussi faible que celui obtenu il y a quelques années avec des films NTA, type B, par G. PORTAL [6], mais il est nettement inférieur à celui trouvé par PIESCH et SAYED [7]. Nos résultats de fading obtenus avec les neutrons des sources Pu-Be et ^{252}Cf sont identiques à ceux cités par D. T. BARTLETT et F. L. CREASEY [8] pour des neutrons de sources Am-Be et ^{252}Cf .

4.3. En ce qui concerne les films exposés auprès d'un accélérateur, les résultats obtenus montrent que l'utilisation de films trimestriels pour la détermination des équivalents de dose dus aux neutrons rapides ne peut pas être envisagée.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] TARDY-JOUBERT Ph. Methods and experience acquired in dosimetry at the Saturne synchrotron. *Symposium on accelerator radiation dosimetry and experience*, Brookhaven, 3-5 November 1965, CONF-651109, 117-143.
- [2] NACHTIGALL D. Average and effective energies, fluence-dose conversion factors and quality factors of the neutron spectra of some (α , n) sources. *Health Physics*, 1967, **13**, 213-219.
- [3] I.C.R.P. Data for protection against ionizing radiation from external sources. *I.C.R.P. Publication 21*, Oxford, Pergamon press, 1973, p. 19.
- [4] HESS W. N. Neutrons from (α , n) sources, Report UCRL-3839, 1957.
- [5] VIALETES H., LE THANH Ph. Utilisation des émulsions nucléaires et d'un compteur proportionnel à hélium-3 pour la spectrométrie des neutrons en radioprotection. In: *Neutron monitoring*, Vienna, 29 August-2 September 1966. Vienne, A.I.E.A., 1967, 375-395.
- [6] PORTAL G. Dosimétrie des neutrons rapides au moyen d'émulsions à protons de recul. In: *Les techniques de la dosimétrie individuelle des radiations externes*, Symposium, Madrid, 1963. Paris, O.C.D.E., 1963, 219-235.
- [7] PIESCH E., SAYED A. M. Latent fading of gamma and neutron monitoring films. *Nucl. Inst. Meth.*, 1975, **123**, 397-402.
- [8] BARTLETT D. T., CREASEY F. L. Latent fading of monitoring films. *Nucl. Inst. Meth.*, 1975, **127**, 149.