

EUR 4506 d

KOMMISSION DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN

DOSIMETRIE IN DER MIKROBIOLOGIE
(Abschlussbericht)

1970



Bericht abgefasst von der
Gesellschaft für Strahlenforschung m.b.H., München - Deutschland
Euratom Vertrag Nr. 066-67-2 BIOD

HINWEIS

Das vorliegende Dokument ist im Rahmen des Forschungsprogramms der Kommission der Europäischen Gemeinschaften ausgearbeitet worden.

Es wird darauf hingewiesen, daß die Kommission der Europäischen Gemeinschaften, ihre Vertragspartner und die in deren Namen handelnden Personen :

keine Gewähr dafür übernehmen, daß die in diesem Dokument enthaltenen Informationen richtig und vollständig sind, oder daß die Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden und Verfahren nicht gegen gewerbliche Schutzrechte verstößt ;

keine Haftung für die Schäden übernehmen, die infolge der Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen, oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden oder Verfahren entstehen könnten.

Dieser Bericht wird in den auf der vierten Umschlagseite genannten Vertriebsstellen

zum Preise von DM 5,10 FF 9,45 FB 70,— Lit. 870,— Fl. 5,10
--

verkauft.

Es wird gebeten, bei Bestellungen die EUR-Nummer und den Titel anzugeben, die auf dem Umschlag jedes Berichts aufgeführt sind.

Gedruckt von L. Vanmelle N.V., Ghent
Luxemburg, August 1970

Das vorliegende Dokument wurde an Hand des besten Abdruckes vervielfältigt, der zur Verfügung stand.

EUR 4506 d

DOSIMETRY IN MICROBIOLOGY - FINAL REPORT

Commission of the European Communities
Report prepared by the Gesellschaft für Strahlenforschung m.b.H.
Munich (Germany)
Euratom Contract No. 066-67-2 BIOD
Luxembourg, July 1970 — 54 Pages — 20 Figures — FB 70,—

Methods were developed for the use of dosimetry in microbiology. In particular, they concern the development and testing of an irradiation plant, the development of suitable methods of measurement to ascertain the radiation energy absorbed in the medium in microbiological subjects and the development of a simple method for determining radiation quality, for use in microbiology.

EUR 4506 d

DOSIMETRY IN MICROBIOLOGY - FINAL REPORT

Commission of the European Communities
Report prepared by the Gesellschaft für Strahlenforschung m.b.H.
Munich (Germany)
Euratom Contract No. 066-67-2 BIOD
Luxembourg, July 1970 — 54 Pages — 20 Figures — FB 70,—

Methods were developed for the use of dosimetry in microbiology. In particular, they concern the development and testing of an irradiation plant, the development of suitable methods of measurement to ascertain the radiation energy absorbed in the medium in microbiological subjects and the development of a simple method for determining radiation quality, for use in microbiology.

EUR 4506 d

KOMMISSION DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN

DOSIMETRIE IN DER MIKROBIOLOGIE
(Abschlussbericht)

1970



Bericht abgefasst von der
Gesellschaft für Strahlenforschung m.b.H., München - Deutschland
Euratom Vertrag Nr. 066-67-2 BIOD

ZUSAMMENFASSUNG

Es werden Methoden zur Dosimetrie in der Mikrobiologie entwickelt. Im einzelnen handelt es sich neben der Entwicklung und Prüfung einer Bestrahlungsanlage um die Entwicklung geeigneter Meßmethoden zur Ermittlung der in mikrobiologischen Objekten im Mittel absorbierten Strahlenenergie und um die Entwicklung einer für die Mikrobiologie brauchbaren und einfachen Methode zur Bestimmung der Strahlenqualität.

SCHLAGWORTER

DOSIMETRY	ABSORPTION
RADIATION DOSES	RADIOACTIVITY
BIOLOGY	TEMPERATURE
RADIATION SOURCES	LUMINESCENCE
RADIATION DETECTORS	LITHIUM FLUORIDES
MONITORING	ACTIVATION ENERGY
RADIATION CHEMISTRY	ELECTRONS
ICRP	TRAPS
STANDARDS	RBE
X RADIATION	PHOTOMETRY
SAFETY	MOLECULES
DOSEMETERS	SOLUTIONS
CHEMICAL RADIATION DETECTORS	ENRICHMENT
RADIATION CHEMISTRY	PHOTONS
ENERGY	

"DOSIMETRIE IN DER MIKROBIOLOGIE"

Schlußbericht *)

Unter welchen Gesichtspunkten man auch immer Strahlenbiologie auf dem Gebiet der Mikrobiologie treibt, in allen Fällen müssen die quantitativen biologischen Ergebnisse als Funktion physikalischer Größen dargestellt werden, die Aussagen machen über die Quantität und Qualität der Bestrahlung. Die Entwicklung adäquater Meßmethoden ist deshalb Voraussetzung für vergleichbare oder quantitativ auswertbare mikrobiologische Untersuchungen.

Benutzt man dünn ionisierende Strahlung, so kann man in einem großen Dosisbereich das makroskopisch definierte Konzept einer mittleren absorbierten Strahlenenergie auch auf Mikroorganismen anwenden. Treibt man Strahlenbiologie mit dicht ionisierenden Strahlungen, dann muß die statistische Verteilung der Energieabsorption bei kleineren Dosen bekannt sein. Diese hängt einerseits von der Teilchenart und deren Energie und andererseits von der Größe und Geometrie der bestrahlten Objekte ab. Bei den Untersuchungen innerhalb dieses Forschungsprogramms wurden nur dünn ionisierende Strahlungen verwendet.

Das gesamte Forschungsprogramm wurde in drei Teilprogramme aufgliedert, wobei sich die Bezeichnung der Teilprogramme

*) Manuskript erhalten am 9. Juli 1969

auf die Anlage I zum Forschungsvertrag bezieht.

- 1.) Teil 3a: Entwicklung und Prüfung einer Bestrahlungsanlage für mikrobiologische Zwecke, die vielseitig einsetzbar ist.
- 2.) Teil 3b: Entwicklung geeigneter Meßmethoden zur Ermittlung der in mikrobiologischen Objekten im Mittel absorbierten Strahlenenergie.
- 3.) Teil 3c: Entwicklung einer für die Mikrobiologie brauchbare und einfache Methode zur Bestimmung der Strahlenqualität.

Teil 3a und Teil 3b konnten innerhalb der zweijährigen Laufzeit des Forschungsvertrages abgeschlossen werden. Für Teil 3c konnte eine Methode zur Bestimmung der Strahlenqualität soweit entwickelt werden, daß sie bei weiterer intensiver Entwicklungsarbeit erfolgreich eingesetzt werden kann.

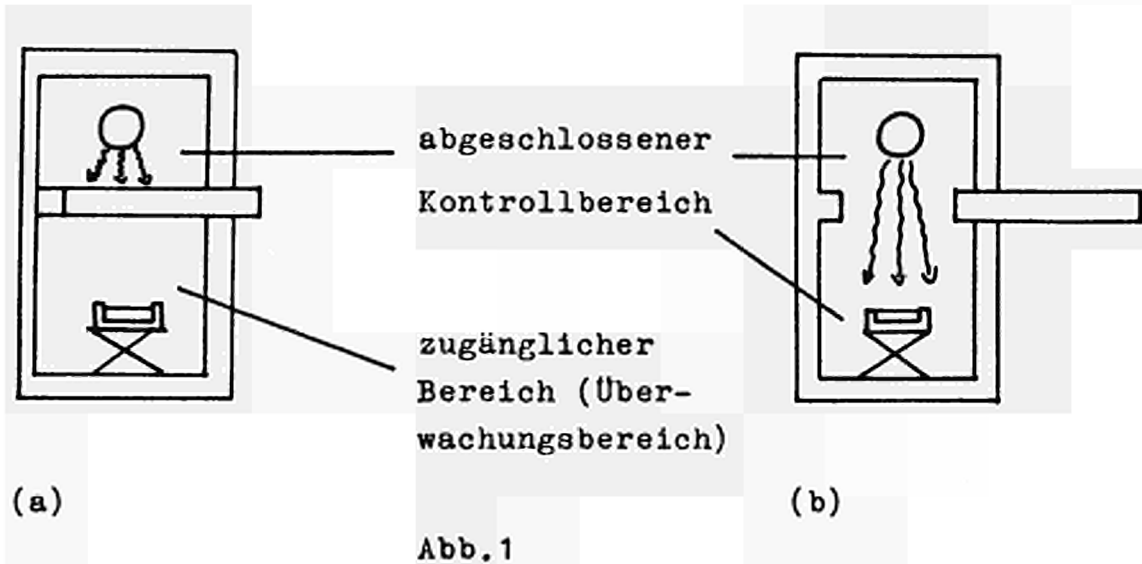
Teil 3a:

Es wurde eine Bestrahlungsanordnung für mikrobiologische Zwecke entwickelt und geprüft.

1. Prinzip der Anlage

Nach Euratom-Grundnormen sind besondere Maßnahmen erforderlich, wenn bei Umgang mit Strahlung ein zugänglicher Kontrollbereich vorhanden ist. Das Ziel der hier beschriebenen Entwicklung ist es, Bestrahlungsanlagen für die Mikrobiologie zu schaffen, in denen mit hohen Dosisleistungen gearbeitet werden kann, aber in keinem Betriebszustand ein zugänglicher Kontrollbereich vorhanden ist. Das Prinzip ist folgendes (s. Abb. 1a und 1b):

Im Betriebszustand (a) befindet sich die Röntgenröhre in einem



nicht zugänglichen Kontrollbereich. Der untere Teil der Bestrahlungsanlage ist zugänglich und gehört zum Überwachungsbereich. Im Betriebszustand (b) ist der untere Teil der Bestrahlungsanlage in den nicht zugänglichen Kontrollbereich einbezogen.

Die Wände der Bestrahlungsanlage sind so ausgelegt, daß keine Strahlung von unzulässiger Stärke nach außen (Überwachungsbereich) austreten kann.

2. Technische Ausführung der ersten Anlage

Eine solche Bestrahlungsanlage für mikrobiologische Zwecke wurde fertiggestellt. Anhand der Abbildungen 2 und 3 sei das Prinzip erläutert. Bei geschlossenem Schieber (in Abb. 2 und 3 gezeigte Stellung) ist die Strahlung auf den oberen Raum (Röhrenkasten) beschränkt. Nur bei dieser Schieberstellung kann die Tür geöffnet werden. Der untere Raum ist zugänglich (Bestrahlungskasten).

Durch eine einfache mechanische Vorrichtung kann bei geöffneter Tür der Schieber nicht aus der in Abb. 2 und 3 gezeigten Stellung gebracht werden. Dies ist erst nach Schließen der Tür möglich. Wird der Schieber herausgezogen (in der Abb. 2 nach rechts), so kann die Strahlung durch die Bohrung in den Bestrahlungskasten eindringen. Bei dieser Schieberstellung wird das Öffnen der Tür durch eine mechanische Verriegelung verhindert.

3. Messung des Strahlenschutzes an der ersten Anlage

Ausführliche Messungen mit einem konventionellen Strahlenschutzmeßgerät ergaben, daß bei vollem Betrieb der Röntgenröhre an der Außenseite der Anlage die Dosisleistung der austretenden Strahlung kleiner als 0,75 mR/h ist. Es ist also kein zugänglicher Kontrollbereich vorhanden.

4. Messung der Dosisleistung in der Nutzstrahlung der ersten Anlage

Bei einer Geometrie, wie sie bei der Bestrahlung von Zellkulturen verwendet wird, wurden die Dosisleistungen in verschiedenen Fokusabständen bei maximaler Belastung der Röntgenröhre (Fa 100/25 der Firma PHILIPS; 100 kV, 25 mA, ohne Filterung) mit dem FRICKE-Dosimeter gemessen. Die maximale Dosisleistung im kleinsten möglichen Fokusabstand betrug ca. 10 krd/min, die für die meisten strahlenbiologischen Untersuchungen ausreichend ist.

5. Planung einer zweiten Bestrahlungsanlage

Dieser Anlage liegt die Idee zugrunde, Röhrenkasten (A) und Bestrahlungskasten (B) als Einheiten aufzufassen, die durch eine Verschraubung nur in einer Weise zusammengesetzt werden können, so daß die Bestrahlungsgeometrie eindeutig erhalten bleibt. Abbildung 4 zeigt das Prinzip der Anlage. Die Maße a, b und c (s. Abb. 4) und von diesen eventuell abhängige Maße sind fest-

gelegt. So können für eine Röhre (bzw. für einen Röhrenkasten) mehrere Bestrahlungskästen gebaut werden, die für verschiedene Untersuchungen ausgerüstet sind. Dadurch ist eine maximale Auslastung der Röntgenröhre gewährleistet.

Alle Röhrenkästen für weitere Röntgenröhren werden unter Beachtung der einmal festgelegten Maße (a, b, c) gebaut, so daß alle Bestrahlungskästen an die vorhandenen Röhrenkästen nur in einer Weise angeschraubt werden können. Mit diesen Röhren- und Bestrahlungskästen als zusammensetzbare Einheit ist eine vielseitig einsetzbare Bestrahlungsanlage geschaffen.

6. Entwicklung und Erprobung von Zusatzapparaturen für die Bestrahlungsanlagen

Zur Kontrolle der Bestrahlung wurde ein robuster Durchstrahlmonitor entwickelt. Die Konstruktion wird unter Absatz 6.1. erläutert. Die Monitorkammer wird an ein spezielles digital anzeigendes Dosimeter angeschlossen, das unter Absatz 6.2. beschrieben wird. In Absatz 6.3. folgt die Beschreibung der Vorrichtung zum Temperieren und Rühren der Bestrahlungsproben.

6. 1. Konstruktion der Monitorkammer (Abb.5)

Die Monitorkammer ist eine Durchstrahl-Ionisationskammer, die in einem Abstand von 70 mm (Abstand = Entfernung zwischen Röhrenfenster und Meßelektroden) vom Röhrenfenster auf einer Halterung sitzt.

Bei der Konstruktion der Monitorkammer wurde besonderer Wert auf Betriebssicherheit gelegt. Alle Teile der Kammer sind leicht auswechselbar. Als Meß- und Hochspannungselektroden dienen mit Aluminium bedampfte Hostaphanfolien (Dicke : 15 μ m), die auf Messingringe geklebt sind. Die Messingringe werden mit Hilfe

von Rändelschrauben fest auf versilberte Zuführungsringe gepreßt. Als Werkstoffe wurden verwendet : Plexiglas für die Kammer, Polyäthylen für die isolierenden Distanzringe zwischen Meß- und Hochspannungselektroden, Teflon zur Isolierung der Meßelektrode und Messing für die elektrisch leitenden Bestandteile der Kammer.

Die Kammer wurde so ausgelegt, daß sie noch bei Dosisleistungen von 5000rd/s zuverlässig arbeitet. Bei einem Sättigungsgrad von $f = 0,98$ und bei der oben genannten Dosisleistung ergibt sich ein maximaler Elektrodenabstand von 5,2 mm für eine Kammer-spannung von 2000 V und von 4,3 mm für eine Kammer-spannung von 1400 V. Für die konstruierte Kammer wurde ein Elektrodenabstand von 4,5 mm gewählt.

6. 2. Die Wirkungsweise des digital anzeigenden Dosimeters

Das Kernstück der Schaltung ist ein elektrostatisches Relais ER (vgl. Abb. 6), dessen Plattensystem P_1 und P_2 über ein abgeschirmtes Kabel mit der Meßelektrode der Monitorkammer verbunden ist. Die Meßelektrode, das Plattensystem P_1 und P_2 und das bewegliche Blättchen BL befinden sich zu Beginn der Messung auf gleichem Potential. Wird die Monitorkammer von ionisierender Strahlung durchdrungen, so gelangt elektrische Ladung auf die Meßelektrode und damit an den Punkt r_0 und die mit ihm verbundenen Platten P_1 und P_2 . Durch die elektrische Ladung auf P_1 und P_2 wird auf das drehbar gelagerte Blättchen BL eine anziehende Kraft ausgeübt, die schließlich zum Kontakt zwischen r_1 und r_2 führt, wenn zwischen P_1 , P_2 und BL eine vom Hersteller eingestellte Spannung (270V) erreicht wird. Es wird nun ein Relais A_1 erregt, das durch Entladen des Kondensators C_3 über seinen Kontakt a_2 den Magneten E das Meßsystem mit Hilfe des Unterbrechers entladen läßt. Dadurch wird das Relais ER wieder in die Ausgangslage gebracht. Durch Entladen von C_4 über seinen Kontakt a_1 erregt

es eine Haltewicklung A_2 . Durch die Dimensionierung von C_3 und C_4 ist es möglich, das Relais A_1 langsam und das Relais E schnell arbeiten zu lassen ($R_4C_4 = 230$ ms, $R_4C_3 = 40$ ms). Eine kurze Abfallzeit des E-Relais ist wichtig, damit die Totzeit der Schaltung möglichst kurz ist. Über den Kontakt a_3 wird ein Zähler geschaltet. Sobald eine eingewählte Zahl erreicht ist, wird ein Mikroschalter betätigt, der die Röntgenröhre ausschaltet. Parallel zum elektrostatischen Relais ER sind Kondensatoren geschaltet, mit denen die Empfindlichkeit des Dosimeters verändert werden kann.

6. 3. Temperier- und Rührvorrichtung (Abb. 7)

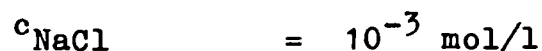
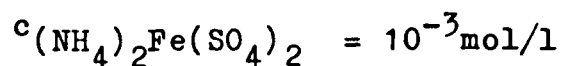
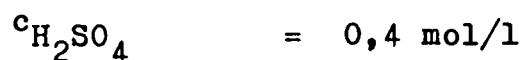
Bei der Konstruktion wurde besonders auf Kleinheit der Apparatur geachtet. Um die Höhe des Gehäuses möglichst niedrig zu halten, wurde ein flacher Kleinst-Synchronmotor der Firma AEG, Frankfurt/M., zum Drehen des Rührstäbchens eingebaut. Die Außenmaße der Apparatur sind : Höhe: 42 mm; Durchmesser : 70 mm.

Teil 3b :

Zur Ermittlung der in mikrobiologischen Objekten im Mittel absorbierten Strahlenenergie kommen praktisch nur die chemischen Dosimeter aus flüssiger und fester Meßsubstanz in Frage. Es wurden insbesondere vier verschiedene Flüssigkeiten, nämlich die Eisensulfat-, die Eisensulfat-Benzoesäure-, die Ce (IV)sulfat- und die Benzollösung, und die LiF-Kristalle als Festkörper auf ihre Eignung als chemische Dosimeter in der Mikrobiologie untersucht. Neben der Verwendung der LiF-Kristalle als integrierende Detektorsubstanzen für die Messung von Strahlung stellen sie gute Modellsustanzen für die Untersuchung von Strahlenwirkung auf Festkörper dar. Aus diesem Grund wurde eine Modell für die Thermolumineszenz in LiF aufgestellt und experimentell geprüft.

1. Das Eisensulfat-Dosimeter

Dieses Dosimeter wurde für mikrobiologische Zwecke untersucht, da es bekanntlich eine sehr gute Reproduzierbarkeit besitzt und in der Strahlenphysik sowie in der Strahlenbiologie schon oft benutzt wird. Das Dosimeter hat folgende Zusammensetzung:



Die in der Dosimeterlösung im Mittel absorbierte Strahlenenergie wird durch Messung der Konzentration der durch die

Bestrahlung entstandenen Fe^{3+} -Ionen bestimmt. Mißt man die Konzentration der Fe^{3+} -Ionen spektralphotometrisch bei $\lambda = 304 \text{ nm}$, so berechnet sich die Energiedosis in der Dosimeterlösung nach:

$$D_s = \frac{N_A \cdot (\varepsilon - \varepsilon_0)}{\rho_s(t'') \cdot d \cdot \varepsilon_m^* \cdot k_1(t') \cdot k_2(t'') \cdot G^*} \quad (1.1)$$

N_A	:	$6,02 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$	(Avogadr. Zahl)
t'	:	Temperatur bei der Extinktionsmessung	
t''	:	Bestrahlungstemperatur	
$\rho_s(t'')$:	Dichte der Lösung bei der Temperatur t''	
$k_2(t'')$:	$1 + 0,0015 \cdot \left(\frac{t''}{^\circ\text{C}} - 25\right)$	
$k_1(t')$:	$1 + 0,007 \cdot \left(\frac{t'}{^\circ\text{C}} - 25\right)$	

d : opt. Weglänge innerhalb der Photometerzelle

ε : Extinktion der Lösung nach der Bestrahlung

ε_0 : Extinktion der Lösung vor der Bestrahlung

ε_m^* : Molarer Extinktionskoeffizient bei der Temperatur $t' = 25^\circ\text{C}$

G^* : G-Wert bei der Temperatur $t'' = 25^\circ\text{C}$

Der G-Wert hängt von der Strahlenqualität ab. Die entsprechenden G-Werte können der Literatur entnommen werden. (vgl. 5).

Die Dosis in Wasser, $D_{\text{H}_2\text{O}}$, berechnet sich nach:

$$D_{\text{H}_2\text{O}} = D_s \cdot \frac{(1 - e^{-\mu_{k,\text{H}_2\text{O}} \cdot x}) / \rho_{\text{H}_2\text{O}}}{(1 - e^{-\mu_{k,s} \cdot x}) / \rho_s} \quad (1.2)$$

wobei x die Schichtdicke der bestrahlten Probe und $\mu_{k,\text{H}_2\text{O}}$ bzw. $\mu_{k,s}$ die energieabhängigen linearen Energieübertragungskoeffi-

zienten für Wasser bzw. für die Dosimeterlösung sind.

Die Versuchsergebnisse zeigten, daß der Dosisbereich des Eisensulfat-Dosimeters von 5 bis 45 krd reicht. Bei der Verwendung von Mikroküvetten kann der Dosisbereich bis zu 1 krd hin ausgedehnt werden. Um die Reproduzierbarkeit des Eisensulfat-Dosimeters zu prüfen, wurden im Zeitraum von 4 Monaten unter Beachtung konstanter Bestrahlungsbedingungen Lösungen aus verschiedenen Lösungsansätzen bestrahlt. Die prozentuale Abweichung der Meßwerte war stets kleiner als 2%. Die Messungen ergaben außerdem, daß eine angesetzte Dosimeterlösung in einer gut verschlossenen Flasche mindestens 4 Monate lang aufbewahrt werden kann.

Aus diesen Ergebnissen geht hervor, daß das Eisensulfatdosimeter für die hier beabsichtigten Zwecke stabil genug ist und reproduzierbare Werte für die in der Meßsubstanz absorbierte Strahlendosis liefert. Das Eisensulfatdosimeter kann deshalb für die Anwendung in der Mikrobiologie sehr empfohlen werden. Allerdings muß die Strahlenqualität der verwendeten Strahlung bekannt sein.

2. Das Eisensulfat - Benzoesäure - Dosimeter

Dieses Dosimeter wurde untersucht, da mit Hilfe dieses Systems der Dosisbereich des Eisensulfat-Dosimeters (vgl. 1) zu niedrigen Strahlendosen hin ausgedehnt werden kann. Dieses Dosimeter setzt sich wie folgt zusammen:

$$c_{\text{H}_2\text{SO}_4} = 0,05 \text{ mol/l}$$

$$c_{(\text{NH}_2)_2\text{Fe}(\text{SO}_4)_2} = 9,26 \times 10^{-4} \text{ mol/l}$$

$$c_{\text{Benzoesäure}} = 1,32 \times 10^{-3} \text{ mol/l} .$$

Die Messung der in der Dosimeterlösung erzeugten Fe^{3+} -Ionen erfolgte wie beim Eisensulfatdosimeter spektralphotometrisch

bei $\lambda = 304$ nm. Die Dosis in der Dosimeterlösung berechnet sich nach Gl. (1.1) in l., die Dosis in Wasser nach Gl. (1.2). Der G-Wert für dieses Dosimeter wurde dadurch bestimmt, daß das Eisensulfatdosimeter (vgl.1.) als Sekundärstandard benutzt wurde.

Wie Abbildung 8 zeigt, besteht im Dosisbereich von 1 bis 5 krd ein linearer Zusammenhang zwischen Dosis und Extinktionsänderung ($\xi - \xi_0$). Die prozentuale Abweichung der gemessenen Extinktionswerte von der gezeichneten Dosiseffektkurve ist in diesem Dosisbereich stets kleiner als 2%. Der graphischen Darstellung ist ebenfalls die sehr gute Reproduzierbarkeit dieses Dosimeters zu entnehmen, wie ein Vergleich zwischen den Meßwerten von zwei Lösungen aus verschiedenen Lösungsansätzen zeigt. Diese Eigenschaften der Lösung erlauben es, die Eisensulfat - Benzoessäure - Lösung als chemisches Dosimeter im Dosisbereich von 200 rd bis 5 krd zu benutzen. Da dieses Dosimeter mit dem Eisensulfatdosimeter kalibriert wurde, ist auch bei diesem Dosimeter die Kenntnis der Strahlenqualität Voraussetzung für eine genaue Dosimetrie.

Es stehen also zwei chemische Dosimeter mit sehr guter Reproduzierbarkeit zur Verfügung, mit denen eine genaue Dosimetrie im Dosisbereich von 200 rd bis 45 krd durchgeführt werden kann.

3. Das Ce(IV)sulfat-Dosimeter

In mehreren Versuchsreihen wurde die Ce(IV)sulfat-Lösung auf ihre Eignung als chemisches Dosimeter in der Mikrobiologie untersucht. Aus meßtechnischen Gründen müssen durch die Strahlung mindestens 20% der anfangs vorhandenen Ce(IV)-Ionen zu Ce(III)-Ionen reduziert werden, um reproduzierbare Meßwerte zu erhalten. Andererseits darf auf strahlenchemischen Gründen der Verbrauch an Ce(IV)-Ionen 60% nicht übersteigen.

Auf Grund dieses Sachverhaltes gehört zu einer bestimmten Konzentration ein begrenzter Dosisbereich.

Aus einer Stammlösung (10^{-1} mol/l Ce(IV)sulfat; 0,4 mol/l H_2SO_4) wurde eine 10^{-4} molare und eine 2×10^{-4} molare Ce(IV)sulfat-Lösung für den Dosisbereich von 5 bis 15 krd bzw. von 10 bis 30 krd durch Verdünnen mit 0,4 molarer H_2SO_4 hergestellt. Die Konzentration der durch die Bestrahlung erzeugten Ce(III)-Ionen wurde spektralphotometrisch bei $\lambda = 320$ nm gemessen. Das Eisensulfatdosimeter (vgl. 1.) diente auch hier als Sekundärstandard. Die benutzten Lösungen lassen eine Dosimetrie mit 5%iger Genauigkeit zu. Die bezüglich des Eisensulfatdosimeters relativ hohen prozentualen Abweichungen haben ihre Ursache in der Empfindlichkeit der sehr verdünnten Ce(IV)sulfat-Lösungen gegen Verunreinigungen. Es ist also in dem hier untersuchten Dosisbereich das Eisensulfatdosimeter dem Ce(IV)sulfat-Dosimeter in jedem Falle vorzuziehen.

4. Das Benzol-Dosimeter

Die Benzollösung wurde auf ihre dosimetrischen Eigenschaften hin untersucht, da sie im Gegensatz zum Eisensulfat- und Ce(IV)sulfat-Dosimeter wasseräquivalent ist. Es wurde Wasser, das zu 10%, 25%, 50% bzw. 100% mit Benzol gesättigt war, mit verschiedenen Strahlendosen bestrahlt. Das Eisensulfatdosimeter diente hier ebenfalls als Sekundärstandard. Das als Hauptprodukt entstehende Phenol wurde spektralphotometrisch bei $\lambda = 270$ nm bestimmt. Im Laufe der Versuche stellte sich heraus, daß sich die 1/4 gesättigte Benzollösung als chemisches Dosimeter am besten eignet. Es besteht innerhalb des Dosisbereiches von 10 krd bis 40 krd ein linearer Zusammenhang zwischen Energiedosis und Extinktionsänderung ΔE . Die Genauigkeit, mit der die Energiedosis bestimmt werden kann, ist besser als 5%.

5. Ein energieunabhängiges Eisensulfat-Dosimeter zur Bestimmung der Energiedosis in Wasser

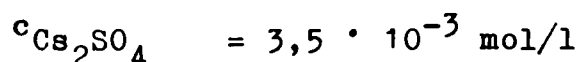
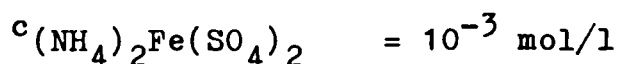
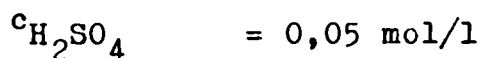
5. 1. Einleitung

Röntgenstrahlen verschiedener effektiver Photonenenergie werden in der Medizin, der Strahlenbiologie und in der Strahlenchemie angewendet. Es werden also weiches Gewebe, Zellkulturen und wässrige Lösungen bestrahlt, die alle in der chemischen Zusammensetzung dem Wasser sehr ähnlich sind. Deshalb besteht ein großes Interesse für ein Dosimeter, mit dem die Energiedosis in Wasser direkt und unabhängig von der Qualität der verwendeten Röntgenstrahlung bestimmt werden kann.

Das bekannte FRICKE Dosimeter (FRICKE und MORSE 1927), das in 1. beschrieben wurde, hat viele Vorteile, der G-Wert und der Umrechnungsfaktor zur Bestimmung der Energiedosis in Wasser hängen jedoch von der Photonenenergie ab. Es ist also die Kenntnis der effektiven Photonenenergie für eine genaue Bestimmung der Energiedosis notwendig.

5. 2. Prinzip des Dosimeters

Ein Flüssigkeitsdosimeter, mit dem die Energiedosis in Wasser direkt und unabhängig von der Photonenenergie in einem weiten Energiebereich bestimmt werden kann, hat folgende Zusammensetzung:



Das Prinzip dieses Eisensulfat-Dosimeters ist wie folgt.
Die Energiedosis in Wasser, D_{H_2O} , in einer Probe der Schichtdicke x wird durch Messung der Konzentration der Fe^{3+} -Ionen bestimmt, die in einer Dosimeterlösung der gleichen Schichtdicke durch die Bestrahlung entstanden sind.

$$D_{H_2O} = \frac{(1 - e^{-\mu_{K,H_2O} \cdot x}) / \rho_{H_2O}}{(1 - e^{-\mu_{K,S} \cdot x}) / \rho_S} \cdot D_S \quad (5.1)$$

mit

$$D_S = \frac{N_A \cdot C}{\rho_S \cdot G_S(t'')} \quad (5.2)$$

- μ_{K,H_2O} : Energieübertragungskoeffizient von Wasser
 $\mu_{K,S}$: Energieübertragungskoeffizient der Dosimeterlösung
 ρ_{H_2O} : Dichte des Wassers
 ρ_S : Dichte der Dosimeterlösung
 N_A = $6,02 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ (AVOGADRO's Zahl)
 C : Konzentration der Fe^{3+} -Ionen nach der Bestrahlung
 $G_S(t'')$: G-Wert der Dosimeterlösung bei der Bestrahlungstemperatur t'' .

Die Abhängigkeit des G-Wertes von der Bestrahlungstemperatur t'' wird durch folgende Formel gegeben:

$$\frac{G_S(t'')}{G_S^*} = 1 + 0,0015 \left(\frac{t''}{[^\circ C]} - 25 \right) = K_2(t''), \quad (5.3)$$

wobei G_S^* der G-Wert bei der Bestrahlungstemperatur $t'' = 25^\circ C$ ist.

Mißt man die Fe^{3+} -Ionen-Konzentration spektralphotometrisch, so kann Gl. (5.2) durch Gl. (5.4) ersetzt werden.

$$D_s = \frac{N_A \cdot (\varepsilon - \varepsilon_0)_s}{\rho_s \cdot G_s(t'') \cdot d \cdot \varepsilon_m(t')} \quad (5.4)$$

$(\varepsilon - \varepsilon_0)_s$: Extinktionsänderung zwischen bestrahlter und unbestrahlter Lösung,

d : Optische Weglänge,

$\varepsilon_m(t')$: Molarer Extinktionskoeffizient für die Wellenlänge $\lambda = 304 \text{ nm}$ bei der Temperatur t' .

Die Abhängigkeit des molaren Extinktionskoeffizienten von der Temperatur t' ist durch folgende Formel gegeben:

$$\frac{\varepsilon_m(t')}{\varepsilon_{m,s}^*} = 1 + 0,007 \left(\frac{t'}{[^\circ\text{C}]} - 25 \right) = k_1(t') \quad (5.5)$$

Benutzt man die Gln. (5.3) und (5.5), so kann Gl. (5.4) wie folgt geschrieben werden:

$$D_s = \frac{N_A \cdot (\varepsilon - \varepsilon_0)_s}{\rho_s \cdot G_s^* \cdot d \cdot \varepsilon_{m,s}^* \cdot k_1(t') \cdot k_2(t'')} \quad (5.6)$$

Erweitert man Gl. (5.6) mit $G_{s,CO}^*$, dem G-Wert für ^{60}Co -Strahlung bei der Temperatur $t''' = 25^\circ\text{C}$, und setzt in Gl. (5.1) für D_s die Gl. (5.6) ein, so erhält man für die Energiedosis

in Wasser folgende Formel:

$$D_{H_2O} = \frac{(1 - e^{-\mu_{K,H_2O} \cdot x}) / \rho_{H_2O}}{(1 - e^{-\mu_{H,S} \cdot x}) / \rho_S} \cdot \frac{G_{S,Co}^*}{G_S^*} \cdot \frac{N_A (\epsilon - \epsilon_0)_S}{G_{S,Co}^* \cdot \rho_S \cdot d \cdot E_{m,S}^* \cdot K_1(\epsilon') \cdot K_2(\epsilon'')} \quad (7)$$

$$D_{H_2O} = f_1 \cdot f_2 \cdot A \quad (7a)$$

Der Faktor A ist von der effektiven Photonenenergie unabhängig, während die Faktoren f_1 und f_2 Funktionen der effektiven Photonenenergie sind.

In den Abbildungen 9a und 9b ist der Ausdruck $1/f_2 = G_S^* / G_{S,Co}^*$ für die Dosimeterlösung I :

$$c_{H_2SO_4} = 0,4 \text{ mol/l}$$

$$c_{(NH_4)_2Fe(SO_4)_2} = 10^{-3} \text{ mol/l}$$

$$c_{NaCl} = 10^{-3} \text{ mol/l}$$

bzw. II:

$$c_{H_2SO_4} = 0,05 \text{ mol/l}$$

$$c_{(NH_4)_2Fe(SO_4)_2} = 10^{-3} \text{ mol/l}$$

$$c_{NaCl} = 10^{-3} \text{ mol/l}$$

gegen die effektive Photonenenergie aufgetragen. Die G-Werte $G_{S,Co}^*$ und G_S^* wurden der Literatur entnommen (HART 1954, McDONELL and HART 1954, DONALDSON and MILLER 1955, HAYBITTLE, SAUNDERS and SWALLOW 1956, SHALEK, SINCLAIR and CALKINS 1962, DAVIES, GREENE and KEENE 1963, FREGENE 1967, LAW and REDPATH 1968, ICRU Report II B 2). Die Dosimeterlösung II ist deshalb angeführt, da diese Lösung

statt Lösung I oft benutzt wird. Da das Eisensulfatsystem gegen Verunreinigungen sehr empfindlich ist, werden in die Lösung II weniger Verunreinigungen durch die Schwefelsäure eingebracht als in die Lösung I.

Der Faktor f_1 für die Lösungen I und II wurde an Hand von Tabellen (HUBBELL and BERGER, NBS Report 8681, 1966) berechnet und gegen die effektive Photonenenergie aufgetragen (vgl. Abb. 9a und 9b). Da die Faktoren f_1 und f_2 bekannt sind, kann das Produkt $f_1 \cdot f_2$ als Funktion der effektiven Photonenenergie berechnet werden. Den Abbildungen 9a und 9b ist zu entnehmen, daß das Produkt $f_1 \cdot f_2$ für die Dosimeterlösung I innerhalb von 4,5% bzw. für die Dosimeterlösung II innerhalb von 10% im Energiebereich von 21 keV bis mindestens 50 MeV für die Schichtdicke $x = 1\text{mm}$ und von 24 keV bis mindestens 50 MeV für die Schichtdicke $x = 10\text{ mm}$ von der Energie unabhängig ist.

5.3. Ergebnisse und Diskussion

Um die Energieabhängigkeit des Produktes $f_1 \cdot f_2$ auf 2 oder 1% zu reduzieren, muß der Kurvenverlauf von f_1 dem von $1/f_2$ so gut wie möglich angepaßt werden. Dies wurde dadurch versucht, indem der Lösung II Cs_2SO_4 in verschiedenen Konzentrationen zugefügt wurde. Da die K-Kante von Cs bei 36 keV liegt, mußte die Abhängigkeit von f_1 von der effektiven Photonenenergie experimentell bestimmt werden. Ein Zusatz von $3,5 \cdot 10^{-3}$ mol/l Cs_2SO_4 zur Dosimeterlösung II zeigte das beste Ergebnis. Für die Dosimeterlösung III :

$$c_{\text{H}_2\text{SO}_4} = 0,05 \text{ mol/l}$$

$$c_{(\text{NH}_2)_2\text{Fe}(\text{SO}_4)_2} = 10^{-3} \text{ mol/l}$$

$$c_{\text{NaCl}} = 10^{-3} \text{ mol/l}$$

$$c_{\text{Cs}_2\text{SO}_4} = 3,5 \cdot 10^{-3} \text{ mol/l}$$

sind in Abbildung 9c die experimentell bestimmten Werte von f_1 für die Schichtdicke $x = 4,4$ mm eingezeichnet. Die Werte von f_1 für eine 1 und 10 mm Schicht wurden anhand von diesen experimentellen Werten berechnet.

In zusätzlichen Experimenten mußte gezeigt werden, daß ein Zusatz von Cs_2SO_4 nur die Absorptionseigenschaften verändert und keinen Einfluß auf die chemischen Prozesse hat, die durch die Energieabsorption ausgelöst werden. Es wurden Proben der Lösung II mit und ohne Zusatz von Cs_2SO_4 mit ^{60}Co -Strahlung und 30 MeV Elektronen (entsprechend einer effektiven Photonenenergie von 50 MeV) bestrahlt, da die Absorption dieser Strahlung von der Ladungszahl unabhängig ist. Ein Zusatz von Cs_2SO_4 bis zu $5 \cdot 10^{-3}$ mol/l zur Lösung II beeinflusst den G-Wert der gemessenen chemischen Veränderung nicht. Das Verhältnis der G-Werte der Lösungen II und III ist wie folgt:

^{60}Co -Strahlung:

$$\frac{G_{\text{II}, \text{Co}}^*}{G_{\text{III}, \text{Co}}^*} = 0,999 \pm 0,002 ;$$

30 MeV Elektronen:

$$\frac{G_{\text{II}, e^-}^*}{G_{\text{III}, e^-}^*} = 0,989 \pm 0,015 .$$

Da die Faktoren f_1 und f_2 für die Dosimeterlösung III bekannt sind, kann das Produkt $f_1 \cdot f_2$ in Abhängigkeit von der effektiven Photonenenergie berechnet werden. Wie Abbildung 9c zeigt ist das Produkt $f_1 \cdot f_2$ im Energiebereich von 21 keV bis mindestens 50 MeV für eine 1 mm Schicht und von 24 keV bis mindestens 50 MeV für eine 10 mm Schicht innerhalb von 1,5% von der Energie unabhängig.

Setzt man für N_A ; $G_{\text{S}, \text{Co}}^*$; ρ_{S} und $\epsilon_{\text{m}, \text{S}}^*$ die entsprechenden Werte ein ($N_A = 6,02 \cdot 10^{23}$ mol $^{-1}$; $G_{\text{S}, \text{Co}}^* = 0,1534$ eV $^{-1}$;

$\rho_s = 1,002 \text{ g/cm}^3$; $\epsilon_{m,s}^* = 2231 \cdot \text{l} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$, so erhält man für die Energiedosis in Wasser folgende Formel:

$$D_{\text{H}_2\text{O}} = 28,13 \cdot (\epsilon - \epsilon_0)_{\text{III}} \text{ krad} . \quad (5.7)$$

Diese Formel gilt für $t' = t'' = 25^\circ\text{C}$ und $d = 1 \text{ cm}$.

Die Unabhängigkeit von der effektiven Photonenenergie kann durch folgende Überlegung bis auf 1% verbessert werden. Im Energiebereich von 22 keV (für eine 1 mm Schicht) bzw. 26 keV (für eine 10 mm Schicht) bis 5 MeV schwankt der Wert für $f_1 \cdot f_2$ zwischen 0,99 und 1,01 und von 5 MeV bis mindestens 50 MeV zwischen 0,986 und 1,004. Zur Bestimmung der Energiedosis in Wasser gelten nun folgende Formeln:

$$D_{\text{H}_2\text{O}} = 28,130 \cdot (\epsilon - \epsilon_0)_{\text{III}} \cdot \text{krad} \quad (5.8)$$

für $22 \text{ keV} \leq E_{\text{eff}} \leq 5 \text{ MeV}$ (1mm Schicht)

$26 \text{ keV} \leq E_{\text{eff}} \leq 5 \text{ MeV}$ (10 mm Schicht)

beziehungsweise

$$D_{\text{H}_2\text{O}} = 27,930 \cdot (\epsilon - \epsilon_0)_{\text{III}} \cdot \text{krad} \quad (5.9)$$

für $5 \text{ MeV} \leq E_{\text{eff}} \leq \text{mindestens } 50 \text{ MeV}$.

Die Formeln (5.8) und (5.9) gelten für $t' = t'' = 25^\circ\text{C}$ und $d = 1 \text{ cm}$.

5. 4 Zusammenfassung

Das hier beschriebene Eisensulfat-Dosimeter hat alle Vorteile des FRICKE-Dosimeters, weist aber außerdem noch die folgenden Vorteile auf:

1. Die Dosimeterlösung ist in einem weiten Energiebereich von der effektiven Photonenenergie bzw. Gammaenergie und damit von der Form des Röntgenspektrums unabhängig.
2. Die Energiedosis in Wasser wird direkt gemessen.
3. Die Verunreinigungen, die durch H_2SO_4 in die Dosimeterlösung hineingebracht werden, sind gegenüber dem FRICKE-Dosimeter stark reduziert.

Literatur:

- DAVIES, J.V., GREENE, D. and KEENE, J. : Phys. Med. Biol. 8 (1963) 97
- DONALDSON, W.M. and MILLER, N. : J. Chim. Phys. 52 (1955) 578
- FREGENE, A.O. : Rad. Res. 31 (1967) 256
- FRICKE, H. and MORSE, S. : Strahlentherapie 26 (1927) 757
- HART, E.J. : Rad. Res. 1 (1954) 53
- HAYBITTLE, J.L., SAUNDERS, R.D. and SWALLOW, A.J. : J. Chem. Phys. 25 (1956) 1213
- HUBBEL, J.H. and BERGER, M.J. : NBS Report 8681 (1966) 88
- ICRU Report II B 2, in preparation
- LAW, J. and REDPATH, A.T. : Phys. Med. BIOL. 13 (1968) 371
- McDONELL, W.R. and HART, E.J. : J. Am. Chem. Soc. 76 (1954) 2121
- SHALEK, R.J., SINCLAIR, W.K. and CALKINS, J.C. : Rad. Res. 16 (1962) 344

Abbildungen:

Abb. 9 : Die Faktoren f_1 und $1/f_2$ als Funktionen der effektiven Photonenenergie für die Dosimeterlösungen I (Abb.9a), II (Abb. 9b) und III (Abb. 9c)

E_{eff} : Effektive Photonenenergie

x : Schichtdicke der Probe

c_A : Konzentration des gelösten Stoffes A

f_1, f_2 : Energieabhängige Faktoren (vgl. Gln. (5.7) und (5.7a))

6. Zur Thermolumineszenz in Lithiumfluorid

I. Messung der Aktivierungsenergien von Elektronen in den verschiedenen Traps

6.1 Einleitung

Werden geeignete dotierte Kristalle aus Lithiumfluorid (LiF) mit ultraviolettem Licht oder ionisierenden Teilchen bestrahlt, so führt ein Teil der dabei absorbierten Strahlenenergie zu einer Verlagerung von Elektronen aus dem Valenz- in das Leitfähigkeitsband. Von dort können sie in Energieniveaus (Traps) gelangen, die energetisch zwischen dem Valenz- und dem Leitfähigkeitsband liegen. In diesen Traps haben die Elektronen eine von der Temperatur abhängige Aufenthaltsdauer. Sie können deshalb auch durch Erhitzen eines bestrahlten Kristalles wieder zurück in das Valenzband gefördert werden. Die bei diesem Rücktransport freiwerdende Energie wird als Lichtquanten abgegeben (Thermolumineszenz). Die Anzahl der bei der Thermolumineszenz emittierten Photonen ist der Anzahl der in den Traps eingefangenen Elektronen proportional und diese wiederum der bei der Bestrahlung absorbierten Energie.

Damit können LiF-Kristalle als integrierende Detektorsubstanzen für die Messung von Strahlung benutzt werden; sie stellen aber auch gute Modellsubstanzen für die Untersuchung von Strahlenwirkungen auf Festkörper dar. Aus diesem Grunde soll hier versucht werden, ein Modell für die Thermolumineszenz in LiF aufzustellen und experimentell zu prüfen, aus dem die wichtigsten physikalischen Parameter experimentell bestimmbar sind.

6.2. Das Modell von Randall und Wilkins +)4)

Im einfachsten Fall kann angenommen werden, daß die zeitliche Änderung der relativen Elektronenzahl in den Traps $d\epsilon_h/dt$ nur durch die Zahl dieser Elektronen selbst und durch deren Entkommwahrscheinlichkeit $\alpha(\tau)$ bestimmt ist:

$$\frac{d\epsilon_h}{dt} = -\alpha \cdot \epsilon_h \quad (6.1)$$

Nimmt man für die Energie der Elektronen in den Traps eine Maxwellverteilung an, so ist:

$$\alpha = \alpha_0 \cdot \exp(-E_c/kT), \quad (6.2)$$

wobei α_0 der sogenannte Frequenzfaktor, E_c die Aktivierungsenergie der Elektronen im Trap und k die Boltzmannkonstante darstellt. Die zeitliche Änderung der Zahl der im Valenzband vorhandenen Elektronen $d\epsilon_c/dt$ ergibt sich aus dem Zuwachs durch die Elektronen aus den Traps (Gl.(6.1)) und dem Abfluß in das Valenzband zu:

$$\frac{d\epsilon_c}{dt} = \alpha \cdot \epsilon_h - \gamma \cdot \epsilon_c \cdot f, \quad (6.3)$$

wobei γ die Entkommwahrscheinlichkeit aus dem Leitfähigkeitsband und f die Anzahl der Moleküle ist, zu denen ein Elektron

+) Im folgenden Kapitel wird soweit wie möglich die Nomenklatur von BRÄUNLICH und SCHARMANN (s.z.B.1) und 2)); die Abänderungen sind durch das in Kap. 6.3. beschriebene erweiterte Modell notwendig.

unter Lichtemission zurückkehren kann.

Es ist stets:

$$f = \varepsilon_c + \varepsilon_h \quad (6.4.)$$

Da aber die Aufenthaltsdauer der Elektronen im Leitfähigkeitsband als sehr kurz gegenüber der Aufenthaltsdauer im Trap angenommen werden kann, ist auch

$$\varepsilon_c \ll \varepsilon_h \quad (6.5)$$

und damit

$$f \approx \varepsilon_h \quad (6.6)$$

Aus Gl. (6.1) und (6.3) folgt somit

$$\frac{d\varepsilon_c}{dt} + \frac{d\varepsilon_h}{dt} = -\gamma \cdot \varepsilon_c \cdot \varepsilon_h \quad (6.7)$$

Aus den gleichen Überlegungen folgt auch, daß für die Elektronen im Leitfähigkeitsband sehr schnell ein stationäres Gleichgewicht zwischen Zu- und Abfluß sich einstellt, also

$$\frac{d\varepsilon_c}{dt} = 0 \quad (6.8)$$

Somit folgt aus Gl. (6.1) und (6.7):

$$\gamma = \frac{\alpha}{\varepsilon_c} \quad (6.9)$$

Die beim Ausheizen eines Lithiumfluorid-Kristalles auftretende Lichtintensität I ist damit:

$$I = \gamma \cdot \varepsilon_c \cdot \varepsilon_h = \alpha \cdot \varepsilon_h = - \frac{d\varepsilon_h}{dt} \quad (6.10)$$

6.2.1 Abklingkurven der Thermolumineszenz $I = f(t)$

Man kann eine LiF-Probe bei konstanter, erhöhter Temperatur T halten und die Lichtintensität der Thermolumineszenz $I = f(t)$ messen. Aus Gl. (6.10) ergibt sich dann eine Abklingkurve:

$$\bar{I}(t) = \alpha \cdot \mathcal{E}_h = \alpha \cdot \mathcal{E}_{h_0} \cdot \exp(-\alpha \cdot t) \quad (6.11)$$

(Aus $\frac{d\mathcal{E}_h}{\mathcal{E}_h} = -\alpha \cdot dt$)

folgt durch Integration: $\mathcal{E}_h = \mathcal{E}_{h_0} \cdot \exp(-\alpha \cdot t)$).

Man erhält also bei konstanter Temperatur ein exponentielles Abklingen der Lichtintensität, wenn nur Traps einer Energie E_e vorhanden sind. Sind dagegen von einander unabhängige Elektronentraps verschiedener Energie $E_{e1}, E_{e2}, \dots, E_{en}$ mit den entsprechenden Entkommwahrscheinlichkeiten $\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_n$ vorhanden, so sollte die Lichtintensität sich als Summe von Exponentialfunktionen ergeben:

$$\bar{I}(t) = \sum_{j=1}^n \alpha_j \cdot \mathcal{E}_{h_0,j} \cdot \exp(-\alpha_j \cdot t) \quad (6.12)$$

Ein Beispiel für eine solche Kurve von LiF zeigt Abb. 17. Die Abklingkurve der Thermolumineszenz von Traps der Energie E kann durch deren Halbwertszeit $T_{1/2}$ charakterisiert werden. Aus Gl. (6.11) folgt:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\alpha_0} \cdot \exp(E_e / kT) \quad (6.13)$$

Wird die Halbwertszeit bei zwei verschiedenen Temperaturen T_1 und T_2 gemessen, so ergibt sich E_e zu

$$E_e = \frac{k \cdot T_1 \cdot T_2}{T_2 - T_1} \cdot \ln \left[\frac{(T_{1/2})_{T_1}}{(T_{1/2})_{T_2}} \right] \quad (6.14)$$

und

$$\alpha_0 = \frac{h\nu_2}{(T_{1/2})_{T_1}} \cdot \exp(E_c / kT_1) \quad (6.15)$$

6.2.2 Glowkurve der Thermolumineszenz I = f(T)

Eine Thermolumineszenzprobe kann aber auch durch eine mit der Heizrate $q = dT/dt$ ansteigende Temperatur ausgeheizt werden. Man erhält dann eine von der Heizrate und der jeweiligen Temperatur abhängige Lichtintensität $I = f(T)$, die auch "Glowkurve" genannt wird. Führt man q in Gl. (6.10) ein, so ist

$$I(T) = \alpha \cdot \epsilon_{h_0} \cdot \exp \left[\frac{1}{q} \int_0^T -\alpha \cdot dT \right] \quad (6.16)$$

(Aus $\frac{d\epsilon_h}{\epsilon_h} = -\alpha \cdot \frac{1}{q} \cdot dT$)

folgt durch Integration $\epsilon_h = \epsilon_{h_0} \cdot \exp \left[\frac{1}{q} \int_0^T -\alpha \cdot dT \right]$)

Sind voneinander unabhängige Traps mit verschiedener Aktivierungsenergien $E_{e1} \dots E_{en}$ vorhanden, so ist:

$$I(T) = \sum_{j=1}^n \alpha_j \cdot \epsilon_{h_0} \cdot \exp \left[\frac{1}{q} \int_0^T -\alpha_j \cdot dT \right] \quad (6.17)$$

Ein Beispiel für eine Glowkurve zeigt Abb. 12. Die durch Gl. (.16) dargestellte Funktion hat ein Maximum bei einer bestimmten Temperatur T^* . Da unter dem Integral in Gl. (6.16) nur eine Exponentialfunktion auftritt, ist es möglich, die Lage dieses Maximums T^* durch Differentiation nach T von Gl. (6.16) und Nullsetzen in geschlossener Form anzugeben. Es

ist:

$$\frac{E_e}{kT^{*2}} = \frac{1}{q} \cdot \alpha_0 \cdot \exp(-E_e / kT^*) \quad (6.18)$$

Wird T bei verschiedenen Heizraten q_1 und q_2 , so ist:

$$E_e = \left(\ln \frac{q_1}{q_2} - 2 \ln \frac{T_1^*}{T_2^*} \right) \cdot \frac{k \cdot T_1^* \cdot T_2^*}{T_1^* - T_2^*} \quad (6.19)$$

und:

$$\alpha_0 = \frac{E_e}{kT_1^{*2}} \cdot q \cdot \exp(E_e / kT_1^*) \quad (6.20)$$

Bei den beiden Thermolumineszenzkurven: a) die Abklingkurve $I=f(t)$ und b) die Glowkurve $I=f(T)$ stellen zwei voneinander unabhängige, verschiedene Verfahren zur Bestimmung von E_e und α_0 dar. Da aber beide aus der gleichen Modellvorstellung abgeleitet wurden, müssen die Ergebnisse auch übereinstimmen, bzw. stellt die Übereinstimmung der Ergebnisse ein Kriterium für die Richtigkeit des benutzten Modells dar.

Aus Gl. (6.13) und (6.18) kann auch eine Kombination beider Methoden abgeleitet werden:

$$E_e = \frac{k \cdot T^{*2}}{q} \cdot \frac{\ln 2}{(T_{1/2})_{T^*}} \quad (6.21)$$

Bei Richtigkeit des benutzten Modells ist nach Gl. (6.21) eine einfache und sehr genaue Bestimmung der Energie E_e möglich, da nicht wie in Gl. (6.13) bzw. (6.18) kleine Differenzen zwischen großen Zahlen experimentell bestimmt werden müssen. Durch Einsetzen von E_e in Gl. (6.15) oder (6.20) kann α_0 genau bestimmt werden. In Abb. 10 ist der Zusammenhang von E_e , T^* und α_0 berechnet und an die Kurven die ebenfalls berechnete Halbwertbreite der Glowkurven angetragen.

6.2.3 Experimentelle Untersuchungen zum Modell von RANDALL und WILKINS

6.2.31 Abklingkurven $I = f(t)$ bzw. Halbwertzeiten $T_{1/2} = f(T)$

In ausführlichen Messungen wurde die in Kap. 6.2.1 beschriebene Methode von ZIMMERMANN, RHYNER und CAMERON⁵⁾ zur Bestimmung der Aktivierungsenergien einiger Traps in LiF benutzt. Die Proben wurden dabei auf konstanter erhöhter Temperatur gehalten und $I = f(t)$ gemessen. Nach einer Zerlegung dieser Kurve in exponentiell abfallende Anteile ergaben sich die Halbwertzeiten der einzelnen Peaks und durch Messungen bei verschiedener Temperatur die Werte für die entsprechenden Aktivierungsenergien. Die so erhaltenen Daten sind in Tab. 1 zusammengestellt.

Eigene Experimente bestätigen das annähernd exponentielle Abklingen der Lichtintensität nach Gl. (6.11) und die von diesen Autoren⁵⁾ gemessenen Halbwertzeiten $T_{1/2}$ (s. dazu auch Abb. 8). Die nach Gl. (6.13) geforderte Abhängigkeit der Halbwertzeit von der Temperatur konnte dagegen nur angenähert gefunden werden (s. dazu Abb. 18), worin schon hier ein Hinweis auf die Unzulänglichkeit des benutzten Modells gesehen wurde. Über genaue Messungen nach diesem Verfahren wird später in Kap. 6.3.21 berichtet.

6.2.32 Glowkurven $I = f(T)$ bzw. Peaklage $T^+ = f(q)$

Zum entscheidenden Test, ob das Modell für die Beschreibung der Thermolumineszenz in LiF ausreichend ist, wurden möglichst genaue Messungen der Glowkurven nach Gl. (6.17) bei verschiedenen Heizraten q durchgeführt.

Als Meßsubstanz diente LiF-Pulver, das ⁺Teflon eingebettet war. [†]in) Die Meßprobe hatte eine quadratische Fläche von $6 \times 6 \text{ mm}^2$ und eine Dichte von $0,88 \text{ g/cm}^3$. Die Dicke wurde im Laufe der Experimente durch Abschleifen schrittweise bis auf $0,29 \text{ mm}$ verringert. Durch die Benutzung von nur einer einzigen Probe für alle Experimente wurde ein hoher Grad an Reproduzierbarkeit gewonnen; durch Vergleiche mit anderen ähnlich hergestellten Proben und mit pulverförmigem LiF ohne Einbettung zeigte sich, daß die Ergebnisse auch dafür anwendbar sind. Das Ausheizen und die Messung der Lichtintensität geschah mit Hilfe eines handelsüblichen Gerätes (Harsahw Thermoluminescence Detector Modell 2000). Zum Schreiben der Glowkurven wurde der Strom des Photomultipliers an den y - Eingang eines XY - Schreibers gelegt (s. dazu Abb. 11). Die

X-Achse des Schreibers wurde als einstellbarer Zeitvorschub benutzt, wobei die auftretende Kompensationsspannung des Schreiber über einen Impedanzwandler zur Temperatursteuerung des Heizgerätes diente. Damit konnte ein sehr genau lineares Ansteigen der Temperatur im Heizgerät (Abweichung von der Linearität kleiner als 0,1%) erreicht werden; außerdem lassen sich verschiedene Heizraten durch einfaches Umschalten des Zeitvorschubs der X-Koordinate reproduzierbar einstellen. Mit einem Schalter "S" konnte eine vorgewählte feste Spannung an die Temperatursteuerung gelegt und damit eine beliebige Temperatur des Heizgerätes konstant gehalten werden.

Als Strahlenquelle diente für diese Untersuchungen eine strahlensichere Röntgenanlage, die speziell für Bestrahlungen in der Mikrobiologie entwickelt wurde und sich für die hier durchgeführten Experimente sehr gut bewährte ³⁾. Die Thermolumineszenzprobe konnte infolgedessen bei Bedarf bereits 10 Sekunden nach dem Bestrahlungsende im Heizgerät ausgewertet werden.

Die Energiedosis in der Probe wurde über ein während der Bestrahlungen mitlaufendes Monitorgerät gemessen, das nach Erreichen einer vorgewählten Energiedosis die Röntgenanlage automatisch abschaltete. Unsicherheiten der so vorgewählten Energiedosis waren kleiner als 0,1%.

In Abb. 12 ist als Beispiel eine aufgenommene Glowkurve und die dabei benutzte Temperaturänderung in einem direkt darauf folgenden Experiment aufgezeichnet. Die Änderungen der mittleren Heizrate waren kleiner als 0,1%; eine dadurch bedingte Verschiebung der Maxima der Glowkurve also nicht nachweisbar. Die Probendichte hatte dagegen einen wesentlichen Einfluß auf die Lage der Glowkurve da bei großer Probendichte die Erwärmung in den einzelnen Schichten verzögert erfolgt.

Aus diesem Grunde wurde die Dicke der Probe schrittweise herabgesetzt. In Abb. 13 sieht man, wie zu erwarten war, daß bei einer großen Heizrate dieser Einfluß am größten ist, daß aber für Heizraten kleiner als $q = 6 \text{ }^\circ\text{K/s}$ eine Extrapolation auf eine Probendicke gleich null mit einem geringen Fehler (etwa $\pm 0,5 \text{ }^\circ\text{K}$) durchgeführt werden kann.

In Abb. 14 sind die Meßergebnisse für die Peaks 1, 2, 3 und 5 von

LiF für eine Heizrate $q = 0,63 \text{ } ^\circ\text{K/s}$ zusammengestellt. Bei der Bestimmung von T^* für die einzelnen Peaks wurde berücksichtigt, daß die Maxima der Peaks nicht mit den gemessenen Maxima der Glowkurve übereinstimmen brauchen, sondern durch die Überlagerung der Peaks etwas verschoben sein können. Zu diesem Zweck wurde die gemessene Glowkurve in Glowkurven einzelner Peaks graphisch aufgeteilt, wobei eine nach Gl. (6.16) berechnete Standardform eines solchen Peaks zugrundegelegt wurde. Die Bestimmung von T^* nach dieser Korrektur weist eine Unsicherheit von etwa $\pm 1^\circ\text{K}$ auf. In Abb. 15 sind die auf Probendicke null extrapolierten Werte von T^* für verschiedene Heizraten aufgetragen. Die nach Gl. (6.19) und G. (6.20) ermittelten Werte für die Energie E_e und die Frequenzfaktoren sind in Tab. 2 zusammengestellt. Es zeigt sich, daß diese Werte durchaus nicht mit den nach Kap. 6.2.31 bestimmten Werten übereinstimmen. Das benutzte Modell von RANDALL und WILKINS kann also nicht als ausreichend angesehen werden, um die Thermolumineszenz bei Anwesenheit von Traps verschiedener Energie E_j zu beschreiben.

6.2.33 Halbwertsbreiten der Glowkurven

Aus den gemessenen Glowkurven können die Halbwertsbreiten der Peaks entnommen und mit berechneten Daten (s. Abb. 10) verglichen werden. Die Halbwertsbreite ist nur sehr gering von der Probendicke abhängig; eine Extrapolation der experimentell bestimmten Halbwertsbreiten auf Probendicke gleich null wurde dennoch durchgeführt und ergab die in Tab. 2 angegebenen Werte. Die Abhängigkeit der Halbwertsbreite von der Heizrate und damit von der Lage T^* der Peaks liegt innerhalb der in Tab. 2 angegebenen Unsicherheit. Der Vergleich mit den nach dem Modell von RANDALL und WILKINS berechneten Halbwertsbreiten in Abb. 10 zeigt, daß sie recht gut zu den Energiewerten passen, wie sie nach Kap. 6.2.32 gemessenen theoretisch wesentlich größere Halbwertsbreiten als sie im Experiment gefunden wurden. Diese Werte in Kap. 6.2.31 scheinen also falsch, die Theorie von RANDALL und WILKINS also gerade für das Zustandekommen von $T_{1/2} = f(T)$ bei Anwesenheit mehrerer Traps

nicht ausreichend zu sein.

6.3 Erweiterte Modelle für die Thermolumineszenz in LiF

6.3.1 Retrapping - Modell

Da die in Kap. 6.2.31 gemessenen Halbwertszeiten $T_{1/2}$ der Abklingkurven nicht der Gl. (.13) folgen, liegt es nahe, an dieser Stelle eine Abänderung am Modell anzubringen. Die Halbwertszeit der Abklingkurve könnte z.B. dadurch beeinflusst werden, daß Elektronen, die beim Erwärmen aus den Traps in das Leitfähigkeitsband gehoben wurden, wieder in die gleichen oder andere Traps zurückfallen (Retrapping). Eine eingehende Analyse ergibt aber dann, daß $T_{1/2}$ von ϵ_h und damit von der in der Probe absorbierten Strahlenergie E_D abhängig wird.

Um das zu testen, wurde E_D um eine Größenordnung größer und kleiner gewählt als bei den Experimenten in Kap. 6.2.31. Dennoch konnte kein solcher Einfluß auf $T_{1/2}$ festgestellt werden. Ein Retrapping ist also bei den hier benutzten Werten von E_D auszuschließen.

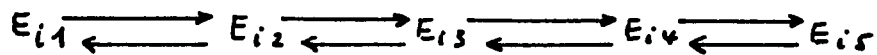
6.3.2 Trap - Dynamik - Modell

Die Halbwertszeit eines Peaks könnte auch dadurch beeinflusst werden, daß Traps von einer Energie E_1 auf eine andere Energie E_1' übergehen. Ist E_1' kleiner als E_1 , dann hat das Elektron von dort nun eine größere Entkommwahrscheinlichkeit. In LiF ist diese Entkommwahrscheinlichkeit in einem benachbarten E_1' um etwa eine Größenordnung größer als bei E_1 . Der Übergang des Traps von E_1 nach E_1' wirkt in diesem Falle wie eine Elektronenemission aus dem Trap E_1 . Die Lichtintensität $I(t)$ wird dadurch größer, der Wert $T_{1/2}$ entsprechend kleiner.

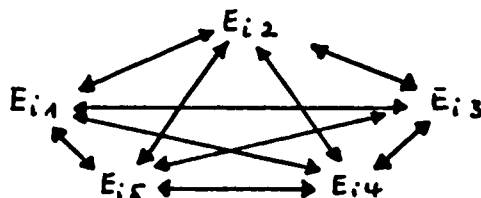
Ist dagegen E_1' größer als E_1 , so nimmt die Zahl der Elektronen in Traps mit E_1 ab, es tritt dabei aber praktisch keine Thermolumineszenz auf, da die Halbwertszeit im Trap mit E_1 , nun etwa

eine Größenordnung höher liegt als im Trap mit E_1 . In diesem Falle wird $I(t)$ kleiner, die Halbwertszeit $T_{1/2}$ aber ebenfalls kleiner. In beiden Fällen würde also eine solche Trapverschiebung die Diskrepanz zwischen den Experimenten nach Kap. 6.2.31 und 6.2.32 erklären können; es wurde deshalb ein Modell entwickelt, das diese Trapdynamik berücksichtigt.

Hierbei wird angenommen, daß zu jeder Temperatur in LiF eine Gleichgewichtsverteilung der Anzahlen der Traps mit verschiedenen E_1 gehört. Wird die Probe auf eine andere Temperatur gebracht, wie das bei den Experimenten in Kap. 6.2.31 und 6.3.32 jeweils der Fall ist, dann geht die Trapverteilung in ihre neue Gleichgewichtsverteilung über. Dabei können zwei verschiedene Mechanismen angenommen werden. Entweder die Traps gehen von einer Energie E_1 nur in benachbarte Energien E_i über, also:



oder es sind auch alle Direktübergänge erlaubt, also:



Eine genauere Untersuchung über diese Trapdynamik soll in einer späteren Arbeit erfolgen. Hier wird ein einzelner Peak herausgegriffen und als erste Näherung angenommen, daß sich die Anzahl der Traps einer bestimmten Energie E_1 kurz nach der Temperaturerhöhung weit vom Gleichgewicht befindet und mit einer Übergangswahrscheinlichkeit

$$f = f_0 \cdot \exp(-E_i/kT) \quad (6.22)$$

in dieses übergeht.

Dann ist die zeitliche Änderung der Elektronenzahl in diesen Traps entsprechend Gl. (6.1):

$$\frac{d\varepsilon_h}{dt} = -\alpha \cdot \varepsilon_h - \delta \cdot \varepsilon_h \quad (6.23)$$

Die zeitliche Änderung der Elektronenzahl im Leitfähigkeitsband ist: (entsprechend G. (6.3))

$$\frac{d\varepsilon_c}{dt} = \alpha \cdot \varepsilon_h - \gamma \cdot \varepsilon_c \cdot f \quad (6.24)$$

Unter den gleichen Voraussetzungen wie vorn bei Gl. (6.5) und Gl. (6.8) folgt:

$$I = \gamma \cdot \varepsilon_c \cdot \varepsilon_h = \alpha \cdot \varepsilon_h \quad (6.25)$$

ε_h ergibt sich durch Integration von Gl. (6.23) zu

$$\varepsilon_h = \varepsilon_{h_0} \cdot \exp[-(\alpha + \delta) \cdot t] \quad (6.26)$$

bzw.
$$\varepsilon_h = \varepsilon_{h_0} \cdot \exp\left[\frac{1}{q} \int_0^t -(\alpha + \delta) dT\right] \quad (6.27)$$

Dann ist:
$$I(t) = \alpha \cdot \varepsilon_{h_0} \cdot \exp[-(\alpha + \delta) \cdot t] \quad (6.28)$$

und
$$I(t) = \alpha \cdot \varepsilon_{h_0} \cdot \exp\left[\frac{1}{q} \int_0^t -(\alpha + \delta) dT\right] \quad (6.29)$$

Man erkennt, daß durch die Trappedynamik eingeführte neue Parameter δ als additives Glied nur in der Exponentialfunktion in Gl. (6.28) bzw. unter dem Integral in Gl. (6.29) auftritt. Es soll nun untersucht werden, ob eine solche Korrektur durch eine Dynamik der Traps die Unterschiede zwischen den Experimenten nach Kap. 6.2.31 und Kap. 6.2.32 quantitativ erklären kann.

6.3.21 Experimentelle Untersuchungen zum Trap - Dynamik - Modell

Durch das Aufheizen der LiF-Probe mit einer Heizrate $q = 3,2 \text{ }^\circ\text{K/s}$ auf eine Maximaltemperatur von $T_{\text{max}} = 300^\circ\text{C}$ werden genügend viele

Traps in Peak 2 der Glowkurve (s. Abb. 12) erzeugt. Im Gleichgewicht sind dagegen bei Temperaturen zwischen 30 und 70°C nur sehr wenige solcher Traps vorhanden. Die in Kap. 6.3.2 gemachten Voraussetzungen für eine erste Näherung zur Behandlung der Trapdynamik sind in diesem Temperaturbereich also für den Peak 2 gegeben.

Um den Übergang von "leeren", d.h. nicht mit Elektronen besetzten Traps in den Gleichgewichtszustand zu messen, wurde TLD-Probe nach dem Ausheizen mit der Heizrate $q = 3,2 \text{ }^\circ\text{K/s}$, durch die die Traps von Peak 2 hergestellt werden, über bestimmte Zeitintervalle t_H vor der Bestrahlung auf einer konstanten Temperatur T gehalten. In Abb. 16a sind Glowkurven aufgezeichnet, die bei anschließender Bestrahlung mit stets gleicher absorbiierter Energie E_E erhalten wurden. Das Abklingen der Trapzahl von Peak 2 ist mit einer entsprechenden Zunahme der anderen Peaks verbunden. Das bestätigt die vorn beim Modell der Trapdynamik gemachten Annahmen, daß ein Trap mit der Energie E_i in einen anderen Zustand E_i' übergehen kann. Werden die Traps von Peak 2 in gleicher Weise durch Aufheizen mit $q = 3,2 \text{ }^\circ\text{K/s}$ auf $T_{\max} = 3000^\circ\text{C}$ erzeugt, die Probe aber erst nach der Bestrahlung über eine bestimmte Zeitdauer t_H auf konstanter Temperatur $T = 65^\circ\text{C}$ gehalten, so ergeben sich anschließend die in Abb. 16b dargestellten Glowkurven. Es zeigt sich, daß der Peak 2 nun völlig verschwindet, die Elektronen also bei dieser Temperatur nach ca 6 Minuten aus diesen Traps emittiert wurden. Gleichzeitig nimmt aber die Zahl der mit Elektronen besetzten Traps höhere Energie (Peak 3-5) zu, wie das auch in Abb. 16a auftrat. Es können also offenbar auch die mit Elektronen besetzten Traps ihre Tiefe bzw. Energie E_i verändern. Die etwas unterschiedlichen Zeitkonstanten bei diesen Trapverschiebungen nach 16a und Abb. 16b deuten daraufhin, daß die mit Elektronen besetzten Traps eine größere Beweglichkeit besitzen als "leere" Traps. Dem Abklingen des Peaks 2 bei $T = 65^\circ\text{C}$ entspricht ein Abklingen des Temperaturlumineszenzstromes I , das in Abb. 17 dargestellt ist.

Berücksichtigt man nun nicht das hier vorgeschlagene Modell der Trapdynamik, sondern sieht man die Kurve nur als Überlagerung der Ströme unabhängiger einzelner Peaks an, so gilt dafür Gl. (6.12).

Man kann dann in Abb. 17 an dem bei großen Werten von t_H gut exponentiellen Verlauf die Halbwertszeit für Peak 3 mit $T_{1/2} = 1400$ s ablesen. Durch Differenzbildung ergibt sich für Peak 2 entsprechend $T_{1/2} = 165$ s und für Peak 1 $T_{1/2} = 40$ s.

Die auf diese Weise für verschiedene Temperaturen T erhaltenen Halbwertszeiten sind in Abb. 18 zusammengestellt. Man erkennt die schon vorn in Kap. 6.2.31 festgestellte Abweichung vom Verlauf nach Gl. (6.13), denn es sollte sich in der gewählten halblogarithmischen Darstellung für jeden Peak eine Gerade ergeben. Würde man versuchen, durch die in Abb. 18 angegebenen Meßpunkte Geraden hindurchzulegen, so würden sich für E_e Werte ergeben, die zwar mit den publizierten⁵⁾, nicht aber mit den nach Kap. 6.2.32 ermittelten Werten übereinstimmen.

Ebenfalls sind in Abb. 18 Werte für die Halbwertszeit von Elektronen in Traps von Peak 2 eingezeichnet, die sich aus einer Flächenmessung der in Abb. 16b dargestellten Glowkurven ergeben. Die Abweichungen dieser Meßpunkte von einer nach Gl. (6.13) geforderten Geraden sind wesentlich geringer und der sich aus der Steigung bei höheren Temperaturen ergebende Energiewert ist in Übereinstimmung mit der Messung nach Kap. 6.2.32 (s. Tab. 2).

Es soll nun versucht werden, eine Erklärung für den gekrümmten Verlauf der Kurven in Abb. 18 nach dem Trap-Dynamik-Modell zu geben. Dazu werden die unter Peak 2 vorhandenen Flächen der Glowkurven in Abb. 16a ermittelt und aus der Abnahme dieser Flächen eine entsprechende Halbwertszeit bestimmt. Trägt man diese Halbwertszeiten als Funktion der reziproken Temperatur auf (s. Abb. 19), so läßt sich die in Gl. 6.22 gemachte Annahme über die Temperaturabhängigkeit von δ gut bestätigen. Für E_i ergibt sich (entsprechend G. (6.14):

$$E_i = 0,40 \pm 0,1 \text{ eV}$$

und für δ_0 (entsprechend Gl. (6.15) :

$$\delta_0 = 2,4 \times 10^2 \text{ s}^{-1}$$

In der gleichen Abbildung 19 sind auch die in Kap. 6.2.31 beschriebenen Messungen des Abklingens der TL-Intensität eingetragen (o). Durch graphische Auswertung der Versuche aus Kap. 6.2.31 und Kap. 6.3.21, die man am einfachsten mithilfe einer Darstellung von

$$\frac{\ln 2}{T_{1/2}} = \alpha_0 \cdot \exp(-E_e/kT) + \delta_0 \cdot \exp(-E_i/kT) \quad (6.30)$$

erreicht, ergibt sich der Verlauf von $T_{1/2}$ für das Abklingen der Elektronenzahl in den Traps. Diese Gerade ist ebenfalls in Abb. 19 eingetragen. Nach Gl. (.14) und G. (6.15) ergibt sich daraus für Peak 2:

$$E_e = 1,77 \pm 0,2 \text{ eV}$$

$$\alpha_0 = 5,5 \times 10^{23} \text{ s}^{-1}$$

in guter Übereinstimmung mit den in Kap. 6.2.32 gemessenen Werten. Für die gleichen experimentellen Daten kann die Lage der Glowkurve und die Verschiebung der Maxima bei verschiedenen Heizraten berechnet werden. Die Berücksichtigung der Trapdynamik ergibt hierbei keine meßbare Änderung der Peaklage gegenüber dem einfachen Modell von RANDALL und WILKINS. Das läßt sich einmal aus Gl. (6.29) verstehen, in der der Zusatzterm δ nur unter dem Integral auftritt. Zum anderen wird der Verlauf der Glowkurve in der Nähe des Maximums durch die Vorgänge bei höheren Temperaturen bedingt und hierbei spielt das Abklingen der Elektronenzahl aus den Traps die wesentliche Rolle. Es ist deshalb verständlich, daß die in Kap. 6.2.32 beschriebene Meßmethode $T^* = f(q)$ auch ohne Korrektur für die Trapdynamik richtige Werte für die Energien E_e liefert.

Die Halbwertbreite der Glowkurven ändert sich bei Berücksichtigung der Trapedynamik nur innerhalb der hier vorliegenden Meßgenauigkeit von $\pm 0,5$ °K. Die gute Übereinstimmung der gemessenen Werte mit dem Modell von RANDALL und WILKINS ist also verständlich.

Tab. 1 Messung von Aktivierungsenergien E_e und Frequenzfaktoren in LiF nach Zimmermann et al⁵⁾.

Peak No.	E_e / eV	α_0 / s^{-1}
4	$1,19 \pm 0,5$	$1-15 \times 10^{11}$
5	$1,25 \pm 0,6$	$0,5 -14 \times 10^{11}$
6	2,1	10^{22}

Tab. 2 Eigene Messungen von Aktivierungsenergien E_e , Frequenzfaktoren α_0 und Halbwertbreiten der Thermolumineszenz in LiF

Peak No.	E_e / eV	α_0 / s^{-1}	HWB / °K
1	$1,41 \pm 0,1$	$1 \cdot 10^{21}$	$15,0 \pm 0,5$
2	$1,77 \pm 0,2$	$5 \cdot 10^{23}$	$15,0 \pm 0,5$
3	$2,26 \pm 0,2$	$1 \cdot 10^{29}$	$15,0 \pm 1,0$
5	$3,62 \pm 0,4$	$1 \cdot 10^{42}$	$14,0 \pm 1,0$

Zusammenfassung:

Aus dem Modell von RANDALL und WILKINS für die Thermolumineszenz lassen sich zwei verschiedene experimentelle Methoden zur Bestimmung der Aktivierungsenergie ableiten; a) die Messung der Halbwertszeit von Elektronen in den Traps als Funktion der Temperatur und b) die Messung der Lage der Peaks der Glowkurve als Funktion der Heizrate. Diese beiden Methoden ergeben aber unterschiedliche experimentelle Werte für die Aktivierungsenergien der Traps. Aus diesem Grunde wird ein erweitertes Modell vorgeschlagen, bei dem die Traps selbst eine von der Temperatur abhängige Verteilung aufweisen. Die von der Temperatur abhängige Übergangswahrscheinlichkeit der Traps in andere Energiezustände wird gemessen und als Korrektur bei den nach der Methode a) gemessenen Werten angebracht. Es zeigt sich, daß diese dann in guter Übereinstimmung mit den Werten nach der Methode b) sind, auf die eine solche Korrektur nur einen sehr geringen Einfluß hat.

Literatur:

- 1) Bräunlich, P. in: D.J. McDougall: Thermoluminescence of geological materials. Academic Press, London and New York (1968)
- 2) Diehl, H., R.Grasser and A.Scharman in: D.J.Dougall: Thermoluminescence of geological materials. Academic Press London and New York (1968)
- 3) Röntgenanlage wurde bereits in Kap.3a erläutert.
- 4) Randall, J.T. and M.H.F.Wilkins: Proc.Soc. A 184, 366, (1945)
- 5) Zimmermann, D.W., C.R.Rhyner and J.R.Cameron: Health Physics 12, 525 (1966)

Abbildungen:

Abb. 10 Zusammenhang zwischen der Aktivierungsenergie E_e , dem Frequenzfaktor ν und der Lage des Maximums T^* nach

dem Modell von RANDALL und WILKINS. An den Kurven ist die berechnete Halbwertbreite der Glowkurve angetragen. Eingezeichnet (●) sind außerdem die in Kap. 6.2.32 gemessenen Daten für LiF.

- Abb. 11: Schema der Meßanordnung. Nähere Erläuterungen im Text.
- Abb. 12: Glowkurve $I = f(T)$ von LiF. Registriert wurde mit einem XY-Schreiber sowohl $I = f(t)$ als auch $T = f(t)$ in zwei aufeinander folgende Experimenten. Zeitachse in Sekunden.
- Abb. 13: Lage T^* des Peaks 2 der Glowkurve von LiF als Funktion der Probendicke d für verschiedene Heizraten q .
- Abb. 14: Lage der Peaks 1,2,3 und 5 der Glowkurve von LiF bei verschiedener Probendicke für eine Heizrate $q=6,63^{\circ}\text{K/s}$.
- Abb. 15: Verschiebung der Peaklage T^* bei verschiedener Heizrate q für die Peaks 1,2,3 und 5 der Glowkurve von LiF (● Meßwerte; + korrigierte Werte für Probendicke Null)
- Abb. 16a: Glowkurven von LiF nach Röntgenbestrahlung. Die Probe wurde vor der Bestrahlung für die Zeitdauer t_H auf konstanter Temperatur $T = 65^{\circ}\text{C}$ gehalten.
- Abb. 16b: Glowkurven von LiF nach Röntgenbestrahlung ($D=1000$ rad). Die Probe wurde zwischen der Bestrahlung und dem Ausheizen für die Zeitdauer t_H auf konstanter Temperatur $T=65^{\circ}\text{C}$ gehalten.
- Abb. 17: Abklingen des Thermolumineszenzstromes I als Funktion der Heizdauer t_H , wenn die Probe nach der Bestrahlung auf der Temperatur $T=65^{\circ}\text{C}$ gehalten wird. Gezeichnet ist der Verlauf des mit einem XY-Schreiber registrierten Stromes des Elektronenvervielfachers I_{exp} und die sich bei der Auswertung ergebenden Abklingkurven für die Peaks 1,2 und 3.

Abb. 18: Halbwertzeiten $T_{1/2}$ für die Thermolumineszenz in LiF bei verschiedener Temperatur, ermittelt aus registrierten Stromkurven wie in Abb. 8 (°) und aus der Abnahme der Flächen der Glowkurven wie in Abb. 16b (+).

Abb. 19: (a) Meßpunkte für das Abklingen des Thermolumineszenzstromes wie in Abb. 17 (●).
(b) Halbwertzeiten für die Abnahme der Flächen unter der Glowkurve wie in Abb. 16a (o).
(c) Durch Differenzbildung erhaltene Gerade für die Emission von Elektronen aus den Traps von Peak 2 (—).

Teil 3c :

Es wurde versucht, eine für die Mikrobiologie brauchbare und einfache Methode zur Messung von Strahlenqualitäten zu entwickeln. Die Untersuchungen konnten zu einem vorläufigen Abschluß gebracht werden. Das Prinzip der entwickelten Methode und die bisher erhaltenen Meßergebnisse seien im folgenden dargelegt.

Der "Strahlenqualitätsmesser" besteht aus 3 verschiedenen Lösungen:

Lösung I : 0,05 mol/l H_2SO_4
 10^{-3} mol/l $(NH_4)_2 Fe(SO_4)_2$
 10^{-3} mol/l NaCl

Lösung II: 0,05 mol/l H_2SO_4
 10^{-3} mol/l $(NH_4)_2 Fe(SO_4)_2$
 10^{-3} mol/l NaCl
0,2 mol/l Cs_2SO_4

Lösung III: 0,05 mol/l H_2SO_4
 10^{-3} mol/l $(NH_4)_2 Fe(SO_4)_2$
 10^{-3} mol/l NaCl
0,5 mol/l K_2SO_4

Die Lösungen II und III unterscheiden sich von der Lösung I nur durch den Zusatz von Cs_2SO_4 und K_2SO_4 . Cs_2SO_4 und K_2SO_4 in der genannten Konzentration haben sich am besten bewährt. Zusätze von Na_2SO_4 , ZnSO_4 und CdSO_4 erwiesen sich im Verlauf der Versuche als weniger geeignet.

Werden Proben der Lösungen I, II, und III unter identischen Bedingungen bestrahlt, so verhält sich der Energiedosiswert der Lösung II bzw. III zu dem der Lösung I wie folgt:

$$\frac{D_{II}}{D_I} = \frac{(1 - e^{-\mu_{k,II} \cdot x}) / \rho_{II}}{(1 - e^{-\mu_{k,I} \cdot x}) / \rho_I} \quad (1)$$

bzw.

$$\frac{D_{III}}{D_I} = \frac{(1 - e^{-\mu_{k,III} \cdot x}) / \rho_{III}}{(1 - e^{-\mu_{k,I} \cdot x}) / \rho_I} \quad (2)$$

mit

$$D_i = \frac{N_A \cdot (\epsilon - \epsilon_0)_i}{\rho_i \cdot G_i(t'') \cdot d \cdot \epsilon_{m,i}(t')} \quad (3)$$

- D_i : Energiedosis in der Lösung i (i = I, II, III)
 $\mu_{k,i}$: Linearer Energieübertragungskoeffizient der Lösung i
 ρ_i : Dichte der Lösung i
 $G_i(t'')$: G-Wert der Lösung i bei der Temperatur t''
 $\epsilon_{m,i}(t')$: Molarer Extinktionskoeffizient der Lösung i bei der Temperatur t'

- x : Schichtdicke der bestrahlten Probe
- d : Optische Weglänge innerhalb der Photometerküvette
- N_A : Avogadro's Zahl ($6,02 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$)

Setzt man Gl. (3) in die Gln. (1) und (2) ein, so erhält man nach Umformungen folgende Gleichungen :

$$\frac{(\varepsilon - \varepsilon_0)_{II}}{(\varepsilon - \varepsilon_0)_{I}} = \underbrace{\frac{G_{II}(t'') \cdot \varepsilon_{m,II}(t')}{G_I(t'') \cdot \varepsilon_{m,I}(t')}}_{A_{II}} \cdot \underbrace{\frac{(1 - e^{-\mu_{k,II} \cdot x})}{(1 - e^{-\mu_{k,I} \cdot x})}}_{B_{II}} \quad (4)$$

und

$$\frac{(\varepsilon - \varepsilon_0)_{III}}{(\varepsilon - \varepsilon_0)_{I}} = \underbrace{\frac{G_{III}(t'') \cdot \varepsilon_{m,III}(t')}{G_I(t'') \cdot \varepsilon_{m,I}(t')}}_{A_{III}} \cdot \underbrace{\frac{(1 - e^{-\mu_{k,III} \cdot x})}{(1 - e^{-\mu_{k,I} \cdot x})}}_{B_{III}} \quad (5)$$

In diesen Gleichungen sind A_{II} und A_{III} konstante Zahlenfaktoren, die nur von den Temperaturen t' und t'' abhängen. Da die Faktoren B_{II} und B_{III} über die linearen Energieübertragungskoeffizienten von der Photonenenergie abhängen, sind die Quotienten

$$\frac{(\varepsilon - \varepsilon_0)_{II}}{(\varepsilon - \varepsilon_0)_{I}} \quad (6)$$

und

$$\frac{(\varepsilon - \varepsilon_0)_{III}}{(\varepsilon - \varepsilon_0)_{I}} \quad (7)$$

Funktionen der Photonenenergie.

Die Abhängigkeit der Quotienten (6) und (7) von der effektiven Photonenenergie wurde experimentell bestimmt. Dafür wurden genaue Bestimmungen von verschiedenen effektiven Photonenenergien mit Hilfe der HWS-Messung durchgeführt. Bei diesen Messungen richteten wir uns nach den Empfehlungen des National Bureau of Standards (NBS Handbook 85, 1964, S.69). Mit den so bestimmten effektiven Photonenenergien (10; 13,5; 15,0; 16,2; 26; 30; 41; 44; 51; 130; und 150 keV) wurden Proben der Lösungen I, II und III unter jeweils identischen Bedingungen bestrahlt und die Extinktionsänderungen $(\mathcal{E} - \mathcal{E}_0)_1$ gemessen. Die Quotienten (6) und (7) der experimentell bestimmten Werte $(\mathcal{E} - \mathcal{E}_0)_1$ wurden als Funktion der effektiven Photonenenergie berechnet und graphisch dargestellt (vgl. Abb.20). Dem Kurvenverlauf von (6) ist zu entnehmen, daß einem bestimmten Wert von (6) zwei verschiedene effektive Photonenenergien zugeordnet werden können. Um diese Zuordnung eindeutig zu machen, muß neben (6) der Quotient (7) experimentell bestimmt werden. Da die Maxima der Quotienten (6) und (7) gegeneinander verschoben sind (vgl. Abb. 20), kann einem Wertepaar von (6) und (7) eine bestimmte effektive Photonenenergie in eindeutiger Weise zugeordnet werden.

Soll also die Strahlenqualität einer Röntgenstrahlung festgestellt werden, so müssen Proben der Lösungen I, II, und III unter identischen Bedingungen bestrahlt und ausgewertet werden. Das erhaltene Wertepaar der Quotienten (6) und (7) gibt dann die Strahlenqualität an. Die Genauigkeit dieser Methode zur Bestimmung der Strahlenqualität liegt zwischen $\pm 3\%$ und $\pm 5\%$ je nach der bestimmten Photonenenergie. Im Energiebereich von 10 keV bis 40 keV und von 55 keV bis mindestens 200 keV beträgt die Genauigkeit $\pm 3\%$, zwischen 40 und 55 keV beträgt sie $\pm 5\%$.

Für eine endgültige Festlegung der Zuordnung zwischen dem Wertepaar (6), (7) und der effektiven Photonenenergie sind

weitere Meßreihen notwendig. Der Kurvenverlauf von (6) und (7) kann also nur ein vorläufiger sein. Die Ergebnisse zeigen aber, daß eine Strahlenqualitätsmessung nach der hier beschriebenen Methode erfolgversprechend ist. Die Vorteile dieser Methode gegenüber der HWS-Messung sind folgende:

- 1) Es wird eine mittlere Strahlenqualität innerhalb der Probe unter den gleichen Bedingungen bestimmt, wie sie auch bei der Bestrahlung von mikrobiologischen Objekten herrschen.
- 2) Für die Bestimmung der Strahlenqualität sind keine zusätzlichen Geräte notwendig (wie z.B. energieunabhängige Ionisationskammern, Filter, Bleiabschirmungen).

In weiteren Experimenten sollen folgende Fragen geklärt werden:

- 1) Man hat für verschiedene Röntgenröhren Röntgenstrahlungen gleicher effektiver Energie durch entsprechende Filterungen hergestellt. Welchen Einfluß hat das Röhrenspektrum auf die Werte der Quotienten (6) und (7)?
- 2) Sollte der Einfluß des Röhrenspektrums groß sein, durch welche Maßnahmen kann dieser Einfluß auf ein Minimum reduziert werden? Es ist daran gedacht, den eventuell vorhandenen Einfluß des Röntgenspektrums durch kombinierte Zusätze von K_2SO_4 , $ZnSO_4$ und Cs_2SO_4 verschiedener Konzentration zur Lösung I zu vermindern.

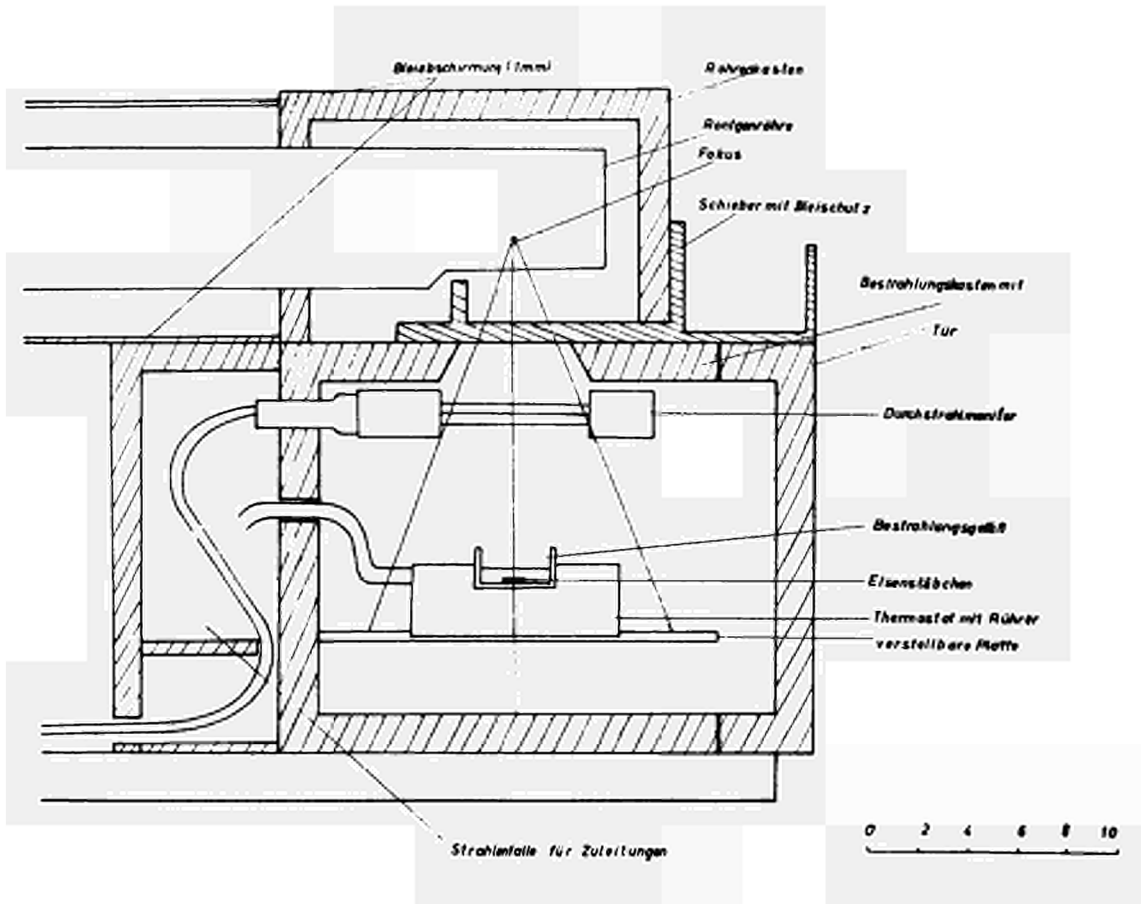


Abb. 2

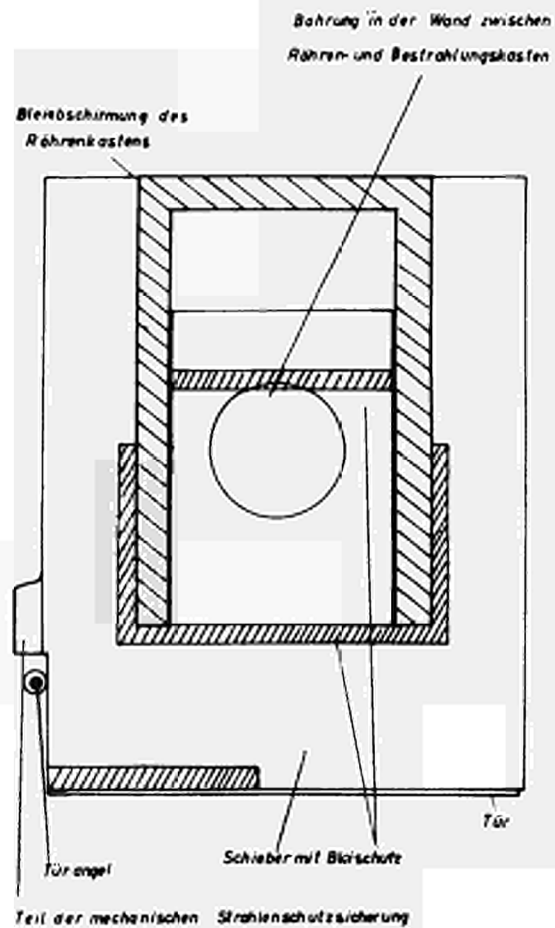


Abb. 3

0 2 4 6 8 10cm

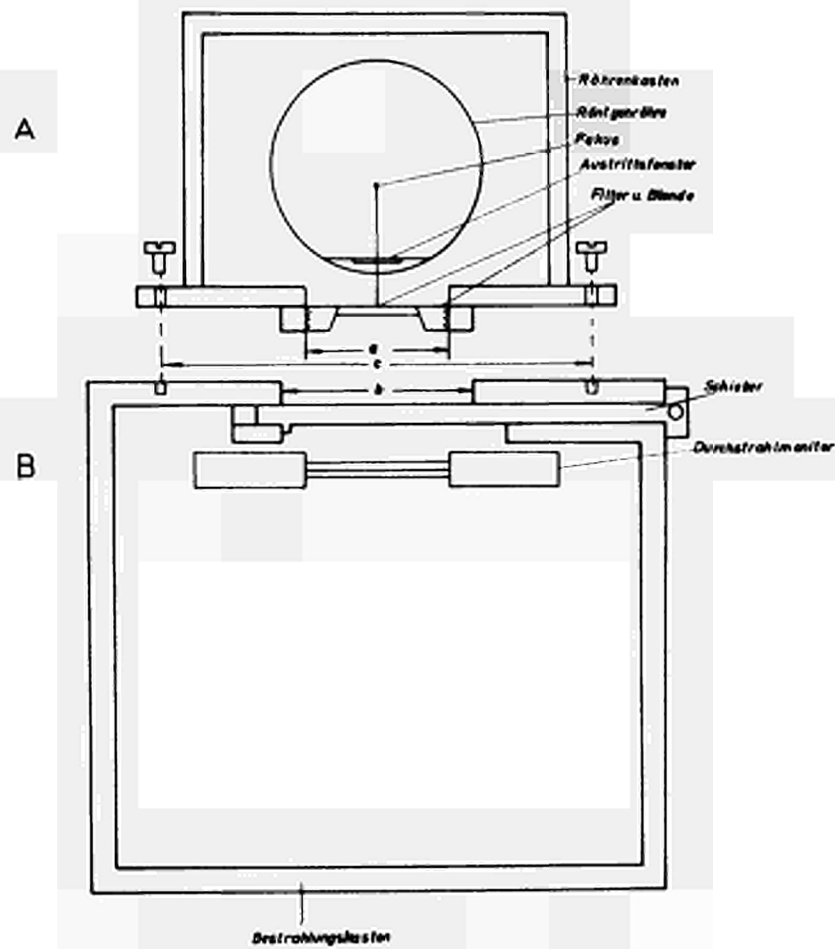
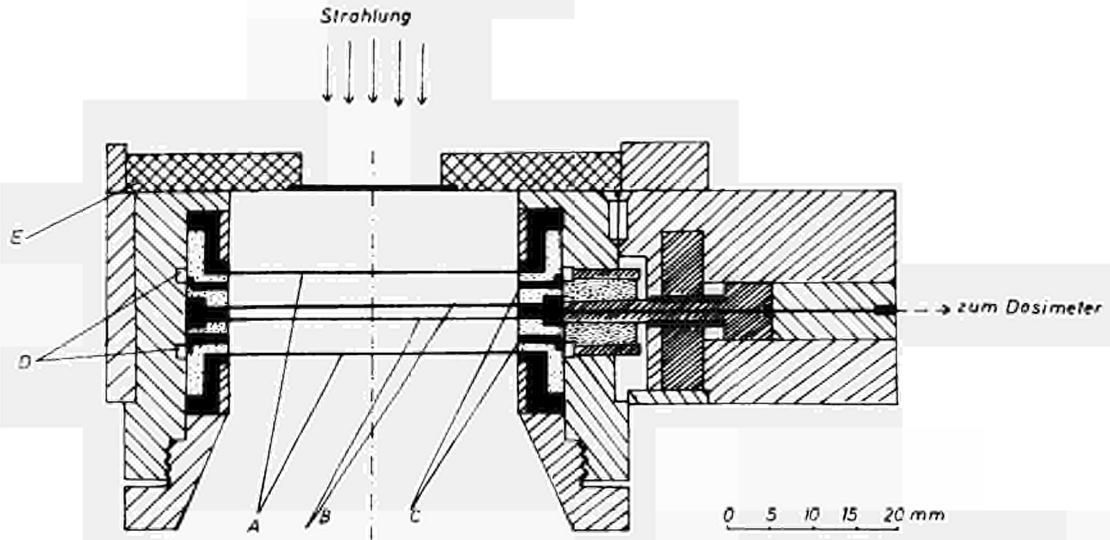


Abb. 4

Monitorkammer



- A Hochspannungselektroden
- B Meßelektroden
- C Geerdete Schutzringe
- D Schutzritzen
- E Bleiblende mit Filter

- MESSING
- PLEXIGLAS
- POLYÄTHYLEN
- TEFLON
- BLEI

Abb. 5

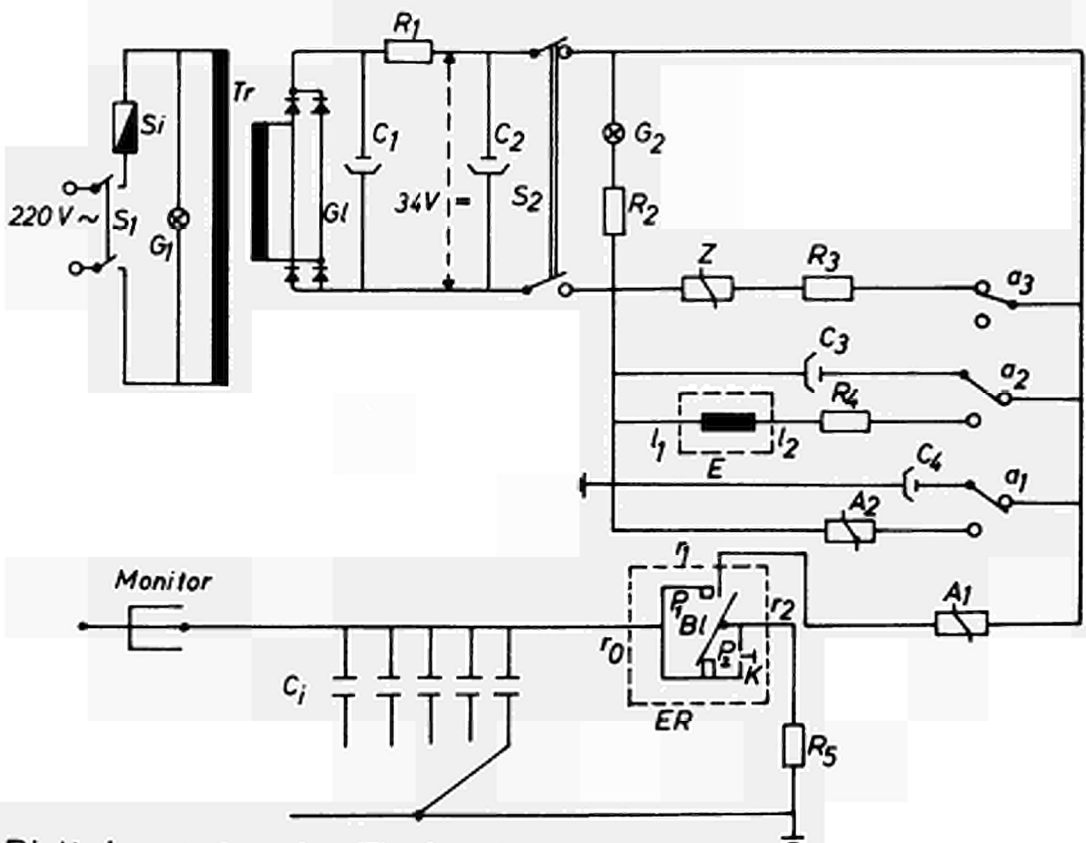
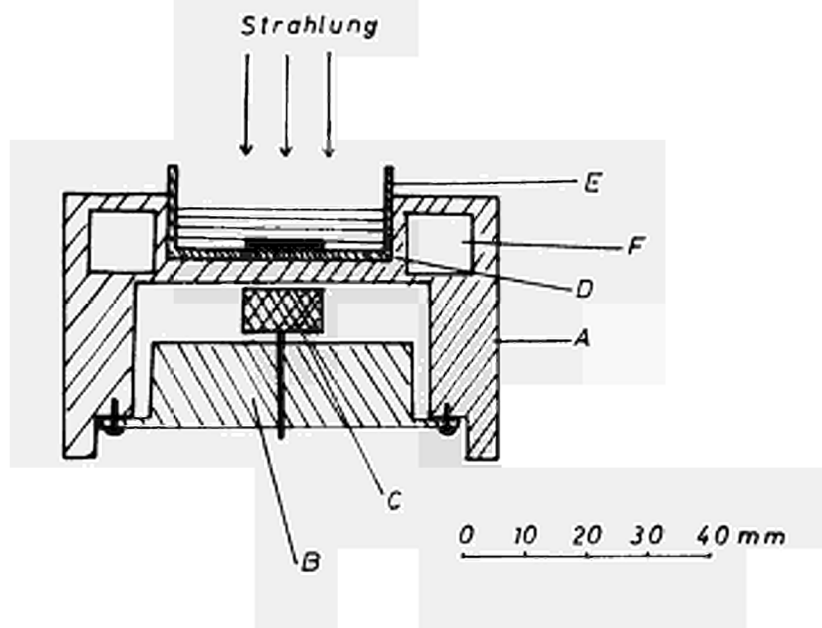
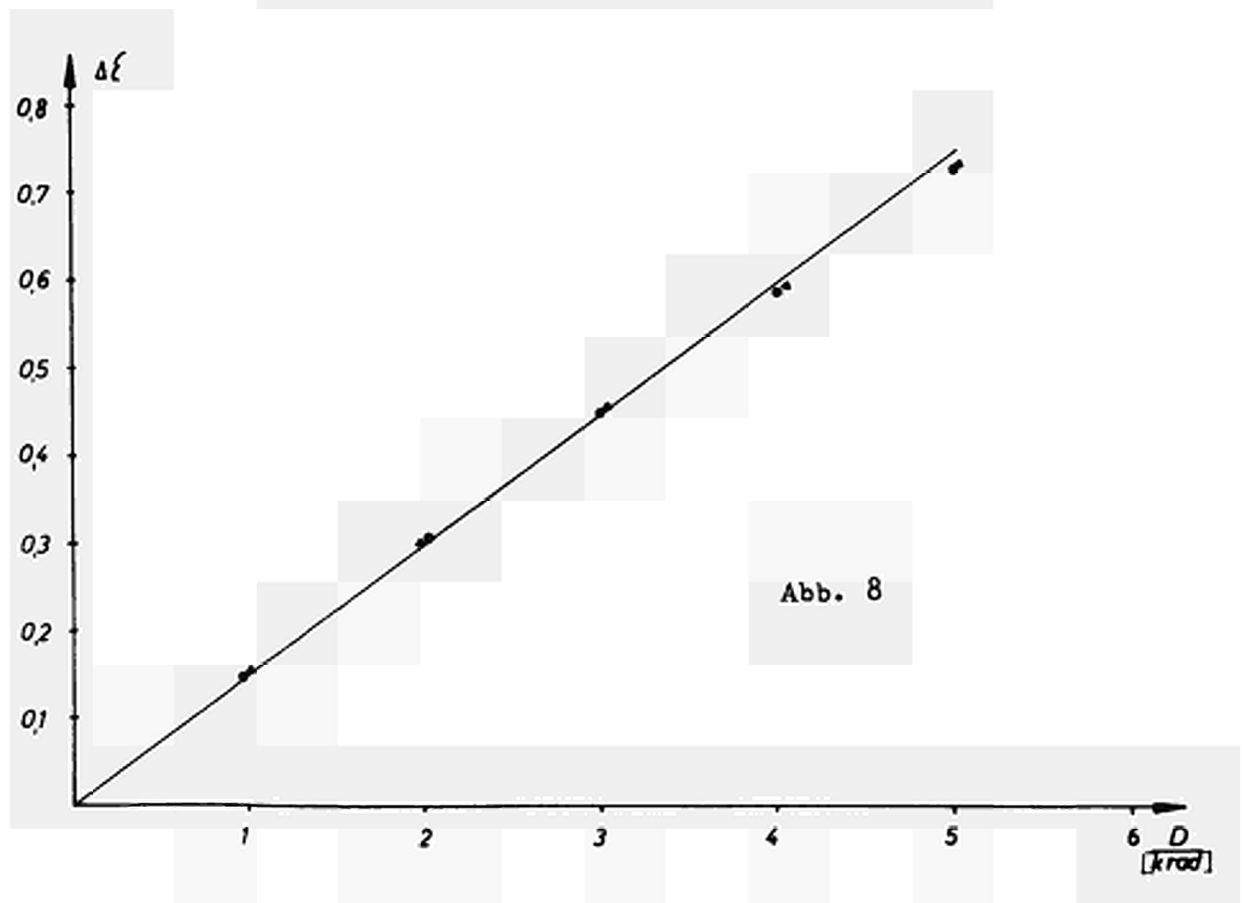


Abb.6: Digital anzeigendes Dosimeter



- A Gehäuse
- B Synchronmotor
- C Permanentmagnet
- D Rührstäbchen
- E Bestrahlungsgefäß
- F Durchfluß

Abb. 7 - Temperier- und Rührvorrichtung



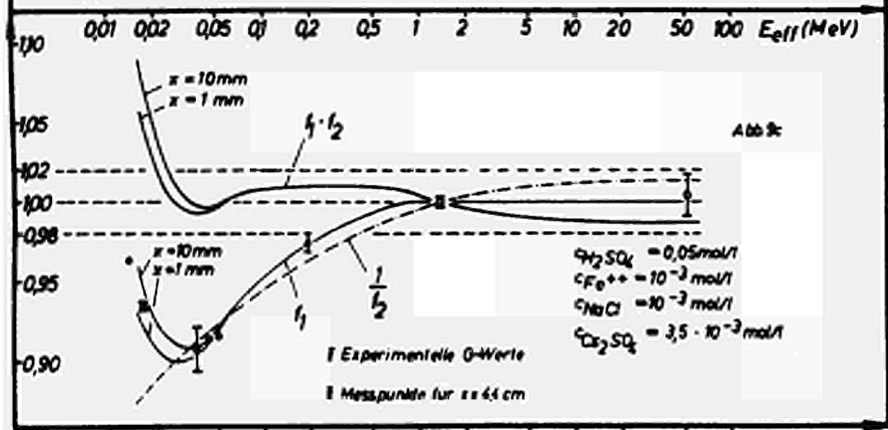
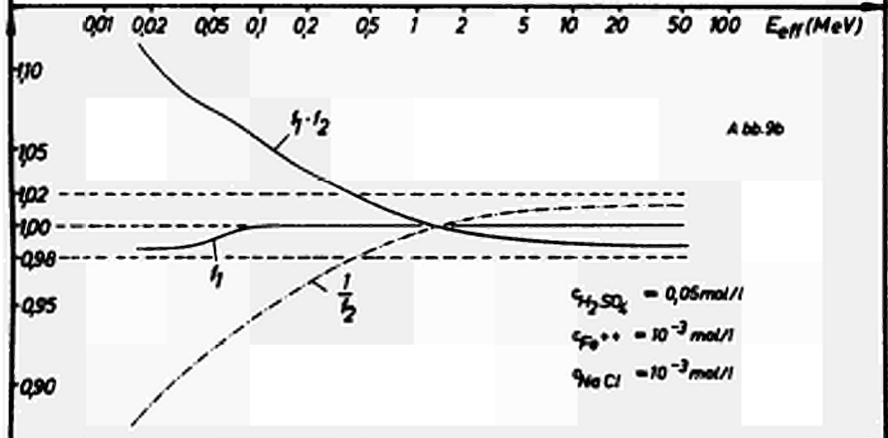
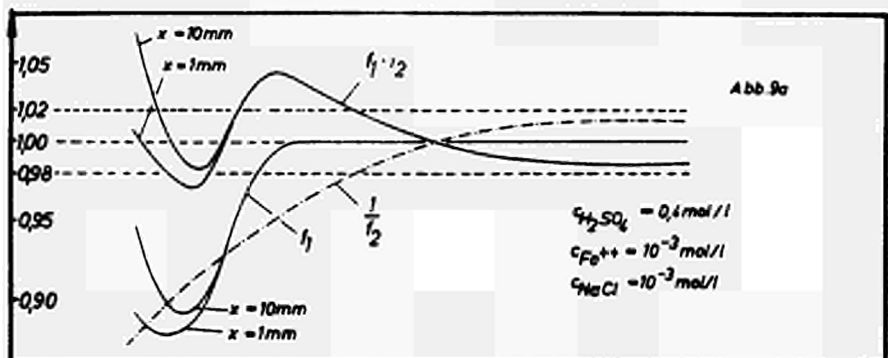


Abb. 9

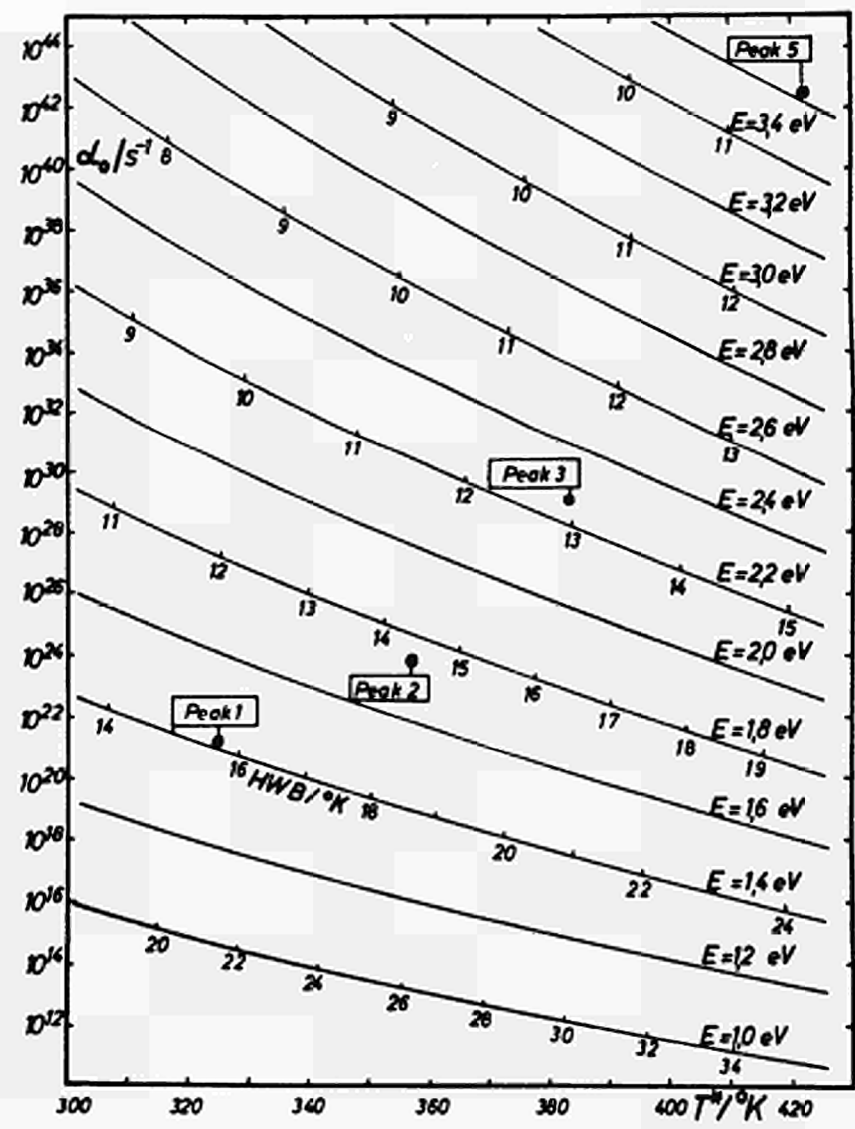


Abb. 10

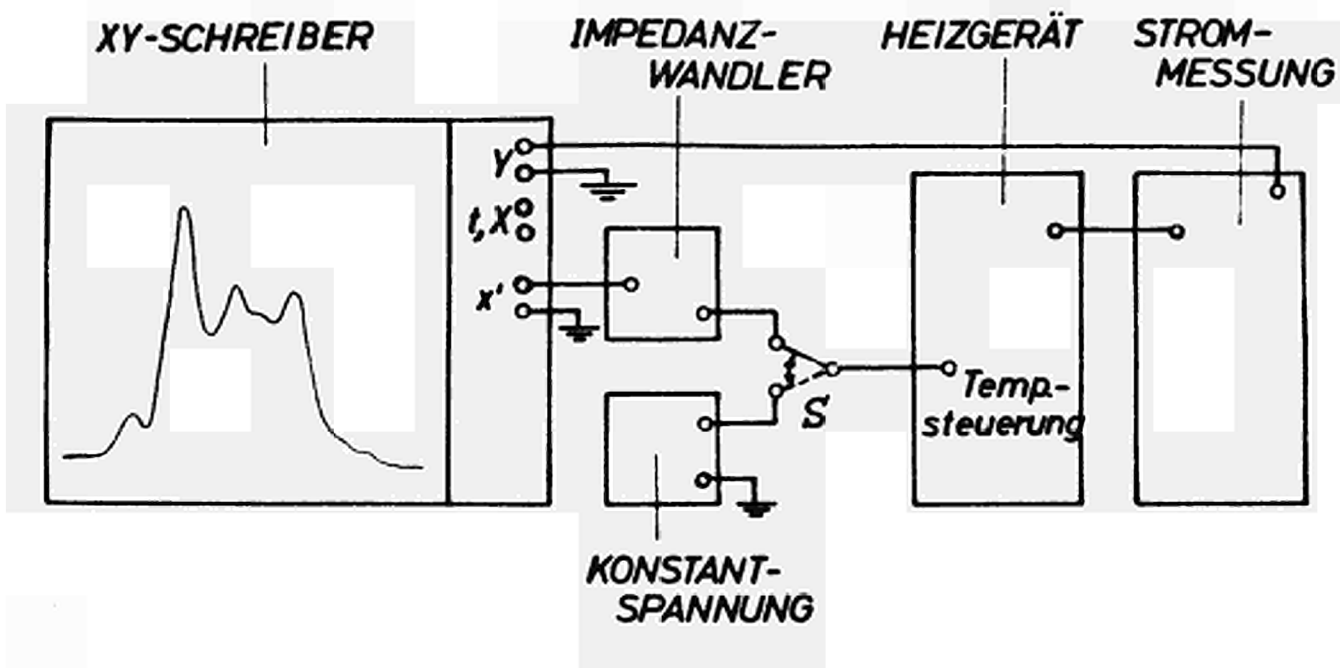


Abb. 11

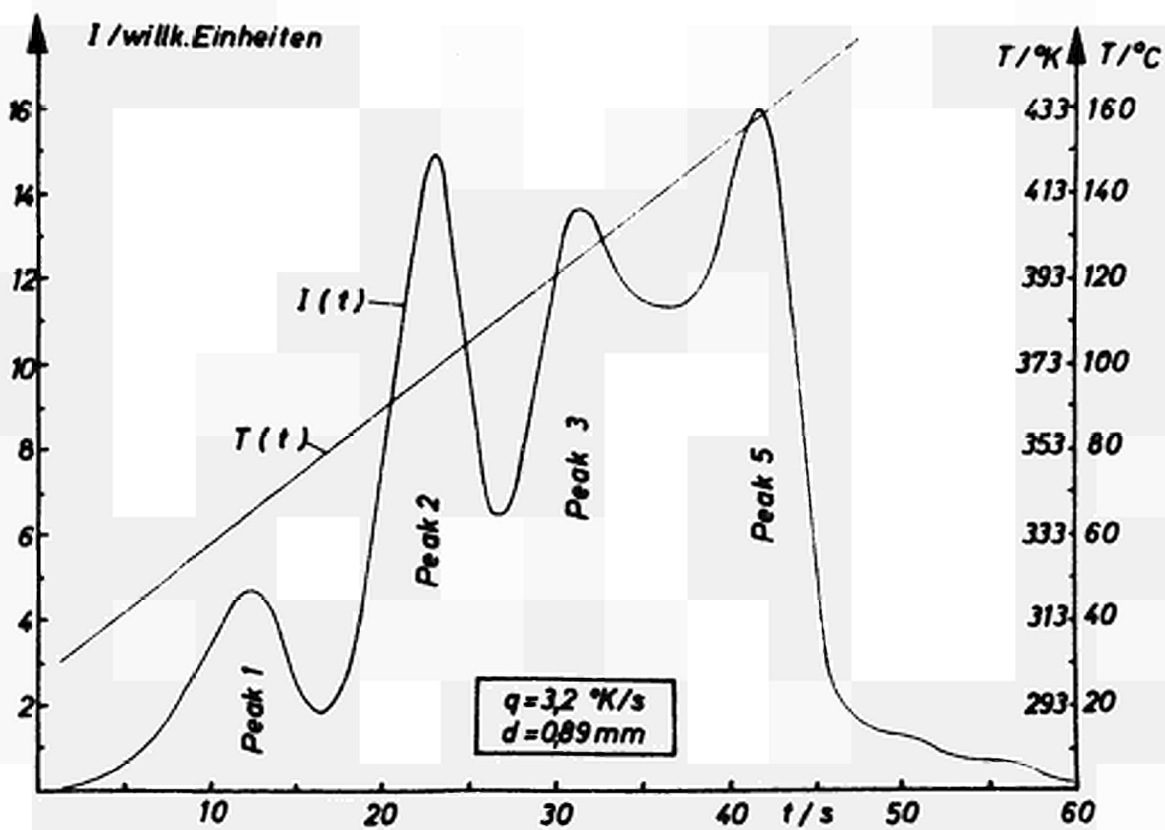


Abb. 12

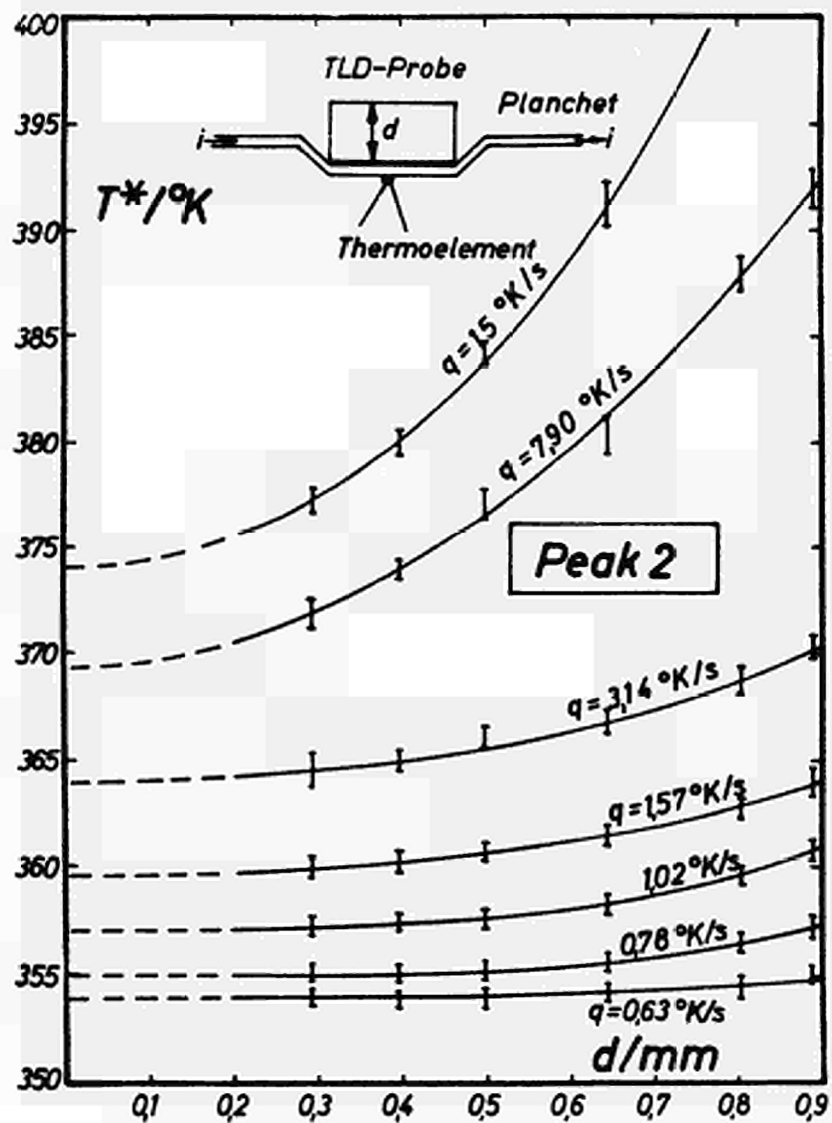


Abb. 13

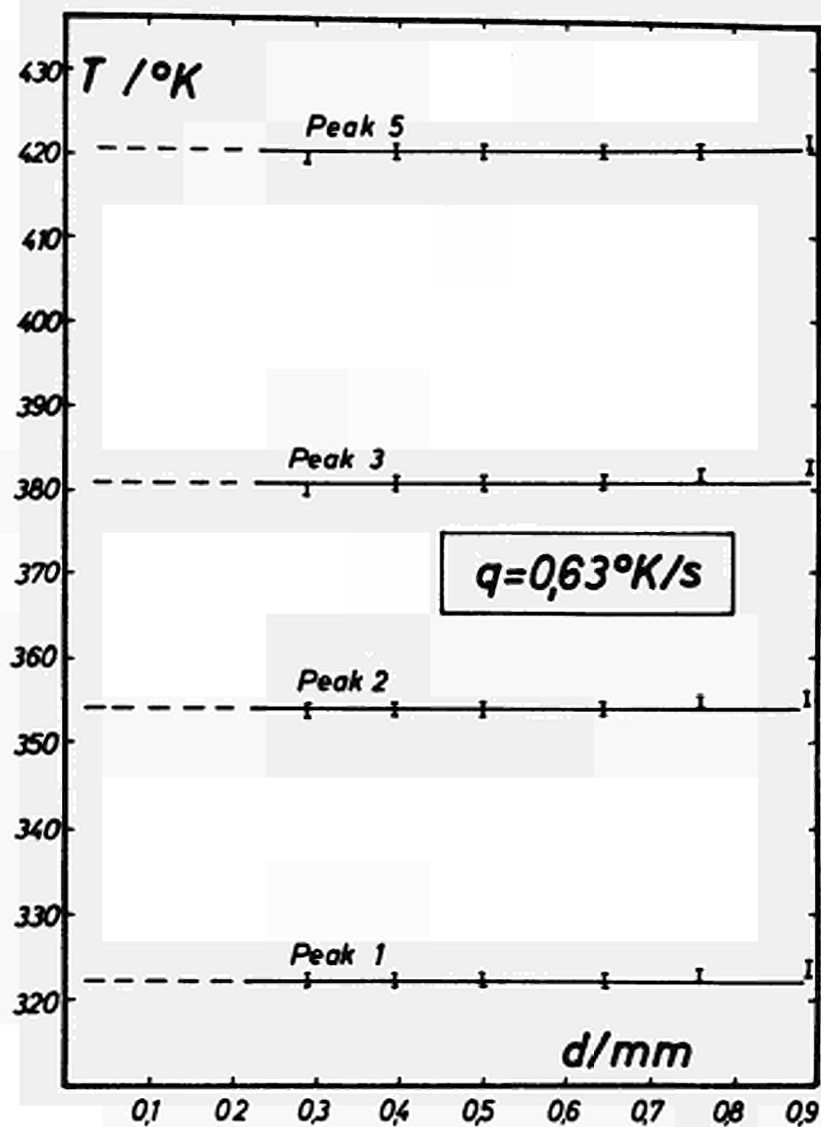


Abb. 14

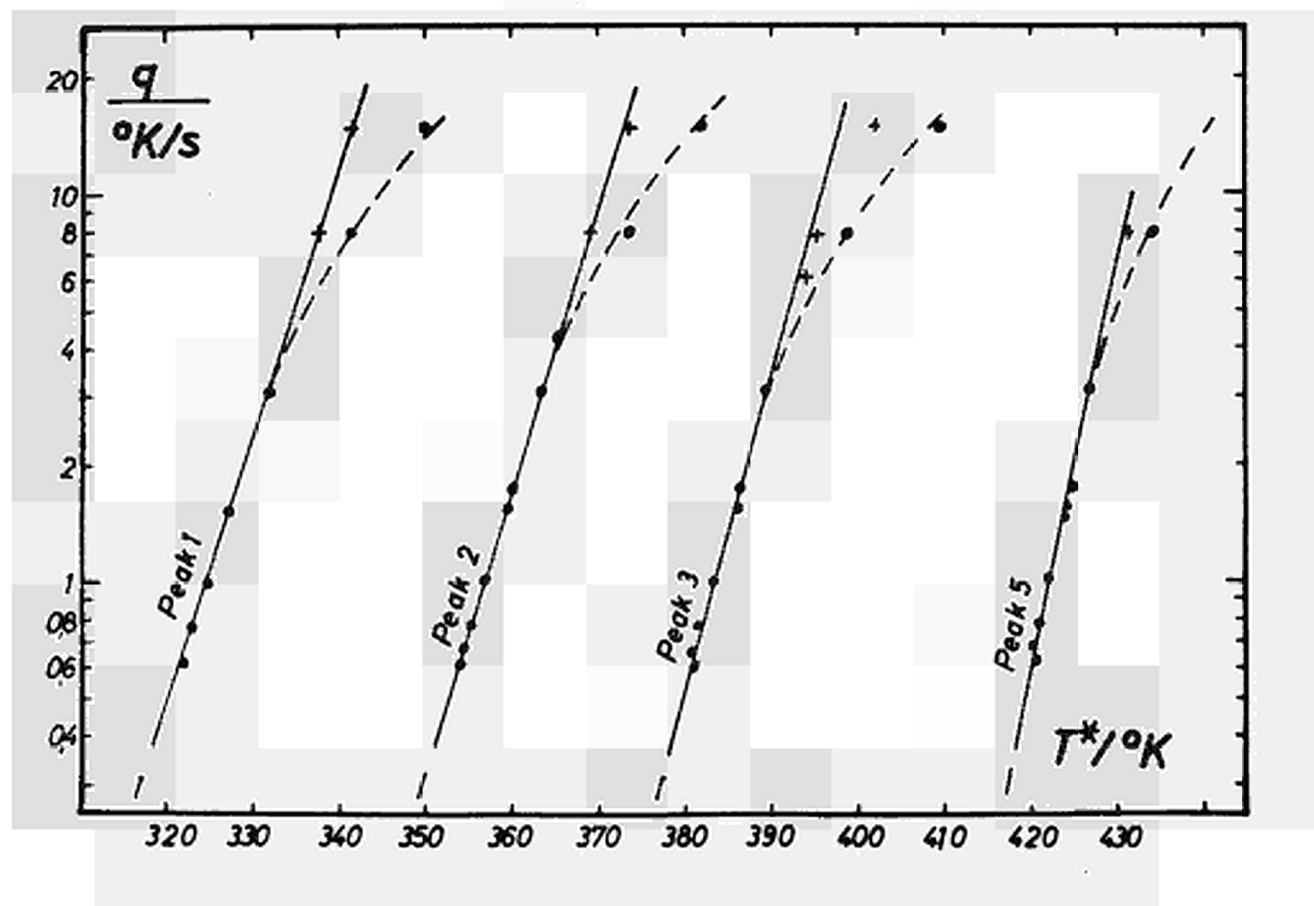


Abb. 15

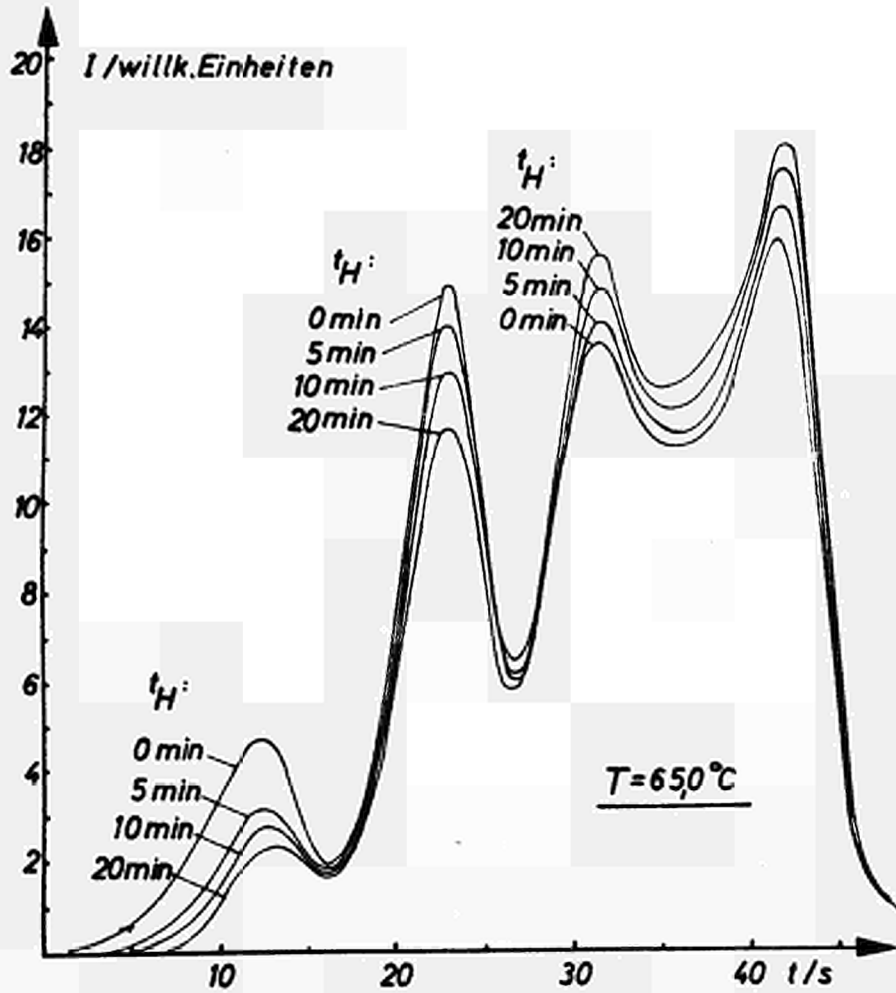


Abb. 16 a

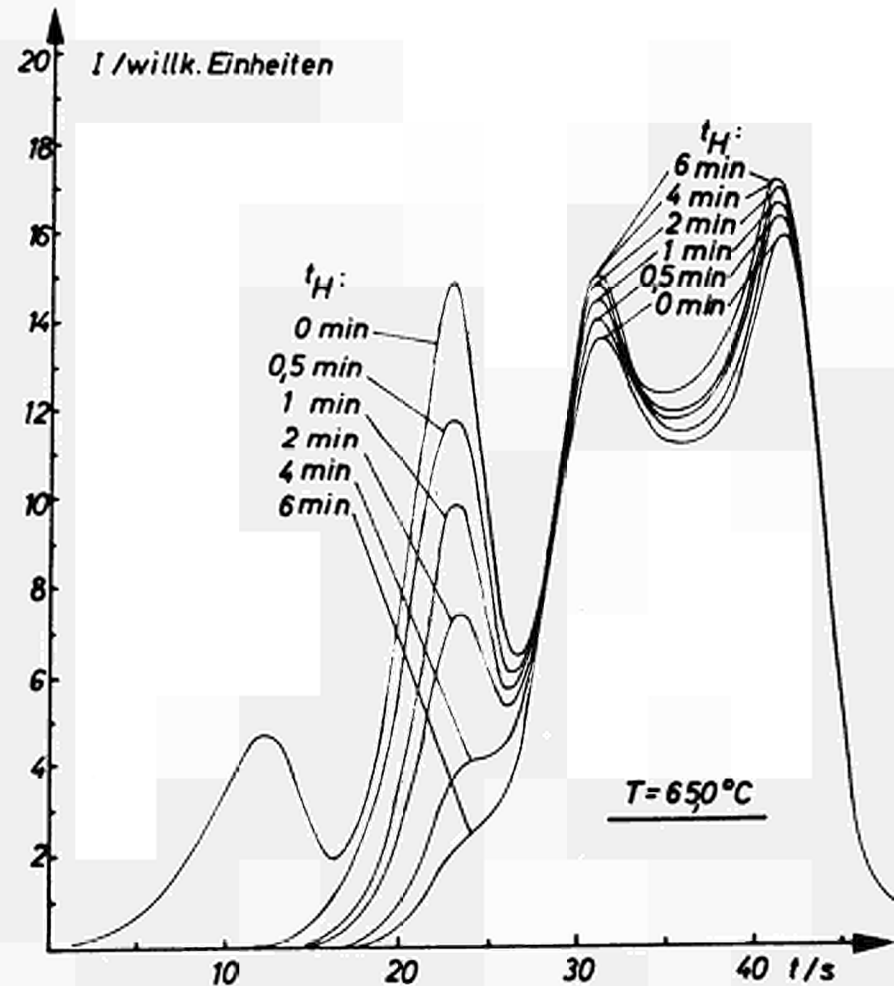


Abb. 16 b

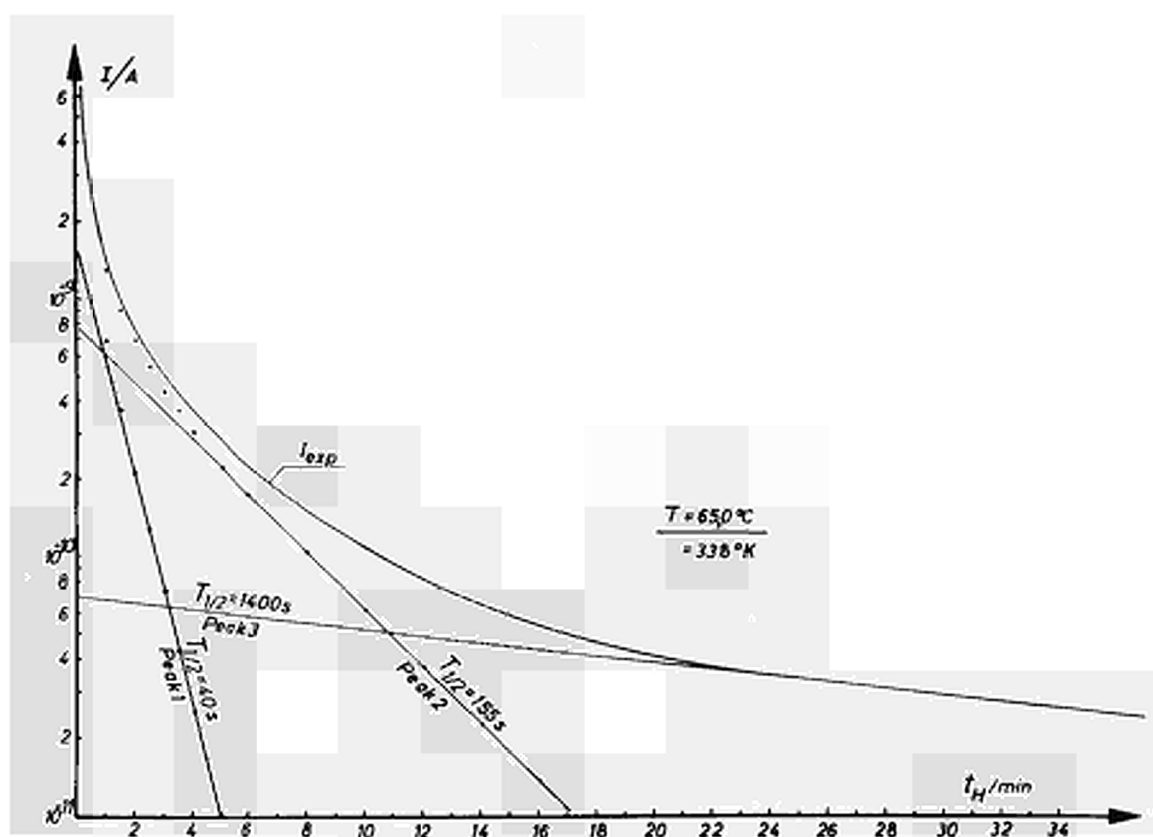


Abb. 17

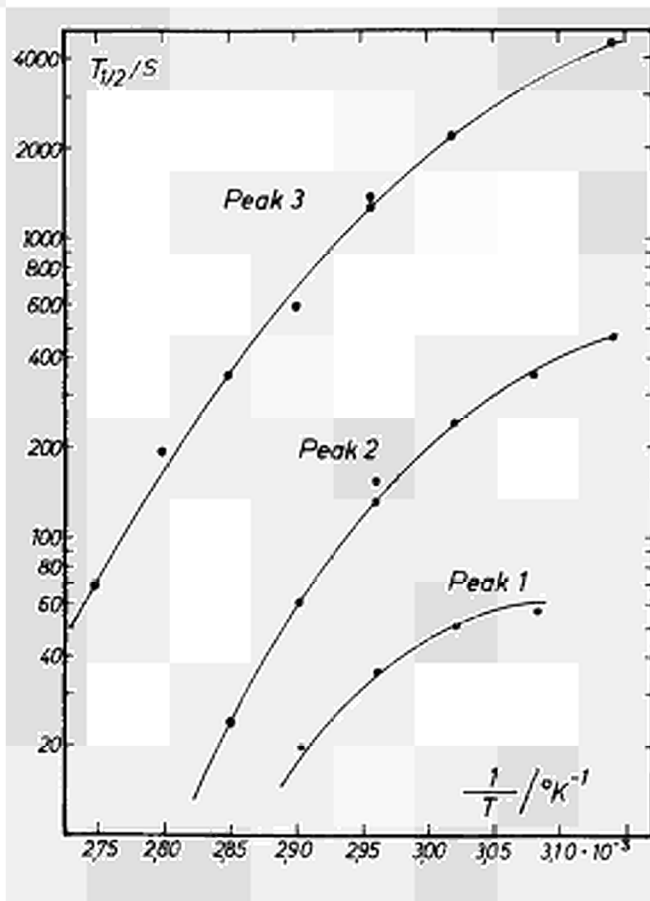


Abb. 18

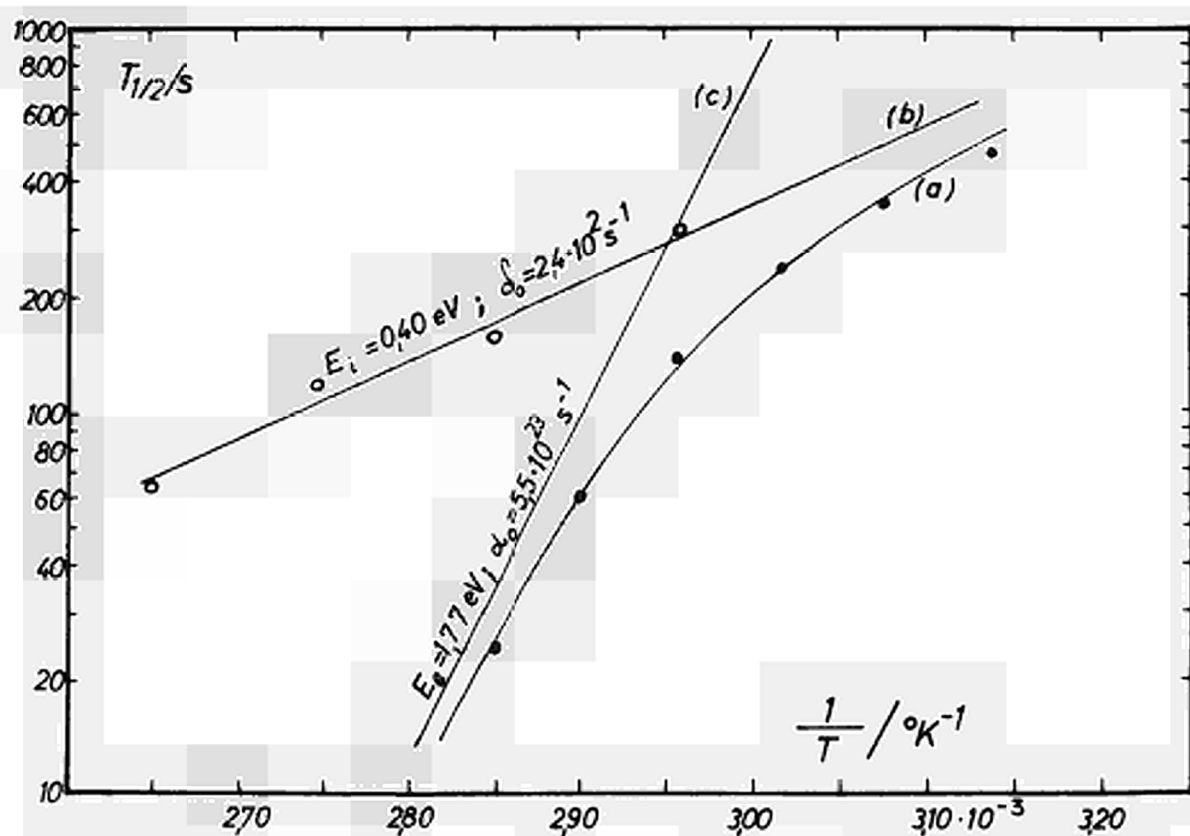


Abb. 19

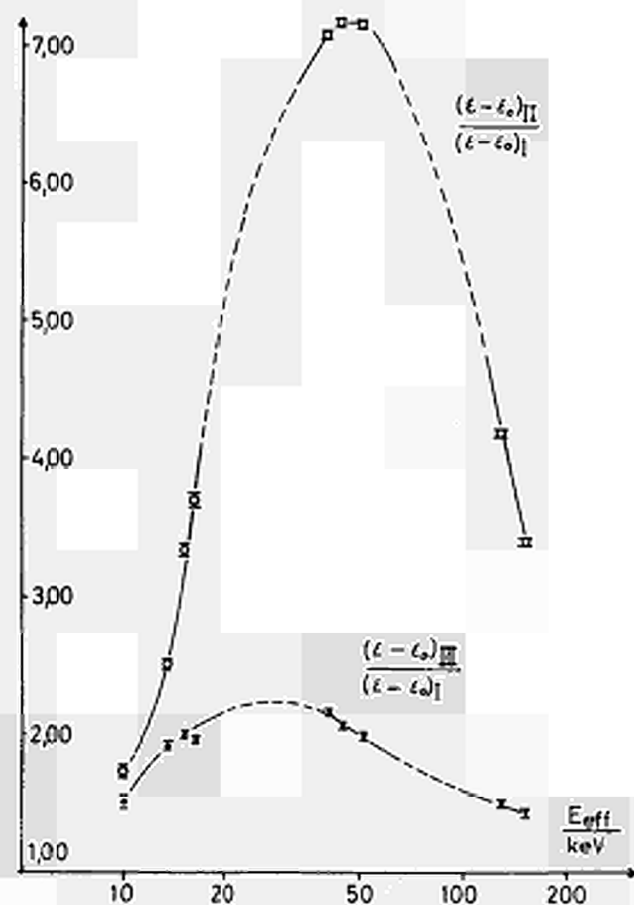


Abb. 20

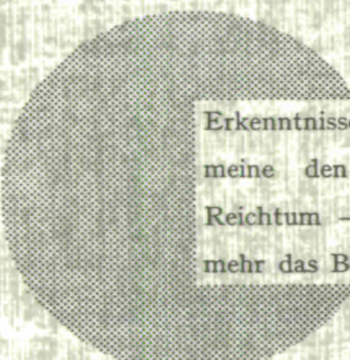
AN UNSERE LESER

Alle Wissenschaftliche und technische Berichte werden nach Erscheinen in der von der Zentralstelle für Information und Dokumentation (CID) herausgegebenen Monatszeitschrift "euro abstracts", angezeigt. Abonnement (1 Jahr : DM 60, BF 820) und Probehefte sind erhältlich bei :

Handelsblatt GmbH
"euro abstracts",
Postfach 1102
D 4 Düsseldorf 1 (Germany)

oder

**Office de vente des publications officielles
des Communautés européennes**
37, rue Glesener
Luxembourg



Erkenntnisse verbreiten ist soviel wie Wohlstand verbreiten — ich meine den allgemeinen Wohlstand, nicht den individuellen Reichtum — denn mit dem Wohlstand verschwindet mehr und mehr das Böse, das uns aus dunkler Zeit vererbt ist.

Alfred Nobel

VERTRIEBSSTELLEN

Alle von der Kommission der Europäischen Gemeinschaften veröffentlichten Berichte sind bei folgenden Stellen zu den auf der ersten Rückseite des Umschlags angegebenen Preisen erhältlich. Bei schriftlicher Bestellung bitte die EUR-Nummer und den Titel, die beide auf der ersten Umschlagseite jedes Berichts stehen, deutlich angeben.

VERTRIEBSSTELLE DER AMTLICHEN VERÖFFENTLICHUNGEN DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN

37, rue Glesener, Luxembourg (Compte chèque postal N° 191-90)

BELGIQUE — BELGIË

MONITEUR BELGE
Rue de Louvain, 40-42 - 1000 Bruxelles
BELGISCH STAATSBLAD
Leuvenseweg 40-42 - 1000 Brussel

LUXEMBOURG

OFFICE DE VENTE
DES PUBLICATIONS OFFICIELLES
DES COMMUNAUTÉS EUROPEENNES
37, rue Glesener - Luxembourg

DEUTSCHLAND

BUNDESANZEIGER
Postfach - 5000 Köln 1

NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ
Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE
DES PUBLICATIONS DES
COMMUNAUTÉS EUROPEENNES
26, rue Desaix - 75 Paris 15^e

ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO
Piazza G. Verdi, 10 - 00198 Roma

UNITED KINGDOM

H. M. STATIONERY OFFICE
P.O. Box 569 - London S.E.1

Kommission der
Europäischen Gemeinschaften
G.D. XIII - C.I.D.
29, rue Aldringer
L u x e m b o u r g

CDNA04506DEC