



Untersuchung der Reproduzierbarkeit eines Thermolumineszenzaufbaus

Bachelorarbeit

vorgelegt von

Nils Hüsken

Münster - 02.08.2011

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	1
2 Theoretische Einführung	3
2.1 Lumineszenz	3
2.2 Thermolumineszenz	4
2.3 Radioaktivität & Dosimetrie	5
2.3.1 Dosis & Äquivalentdosis	7
2.3.2 Dosimeter	8
2.4 Thermolumineszenzdosimetrie	9
2.4.1 Lithiumfluorid	11
2.4.2 Glühkurven	11
3 Experimenteller Aufbau	17
3.1 Bestrahlungsapparat	17
3.2 Messkammer	18
3.3 Probenkopf	19
3.4 Messprogramm	20
4 Mögliche begrenzende Faktoren der Reproduzierbarkeit	23
4.1 Ausheizvorgang	23
4.1.1 Post-Readout-Annealing	23
4.1.2 Pre-Readout-Annealing	26
4.2 Heizrate	28
4.3 Einfluss der Dosisleistung	28
5 Untersuchung der Reproduzierbarkeit	31
5.1 Kristall 01: Bisheriges Messverfahren	32
5.2 Kristalle 18 & P1: konstante Heizleistung	36
5.2.1 Heizrate	36
5.2.2 Abhängigkeit des Untergrundes von der Heizrate	38
5.2.3 Analyse der Glühkurven	39
5.3 Kristall 17: Post-Readout-Annealing	42
5.4 Kristall 20: Pre- & Post-Readout-Annealing	43
5.5 Kristalle 21 & P2: konstante Heizleistung & Post-Readout-Annealing	46
5.6 Zusammenfassung	48
6 Probleme mit dem Aufbau	51
6.1 Temperaturmessung	51
6.2 Bestrahlungsapparat	53
7 Ausblick	55
8 Danksagung	57
9 Quellenverzeichnis	59
10 Anhang	61

10.1 Berechnung der effektiven Ordnungszahl von Lithiumfluorid	61
--	----

1 Einleitung

Die Dosimetrie, die Messung von Strahlungsdosen, spielt in der heutigen Zeit eine wichtige Rolle in Wissenschaft, Gesellschaft und Politik. Themen wie die Risiken von Kernkraftwerken oder das Problem derendlagerung beschäftigen uns jeden Tag und führen dazu, dass das Gebiet der Dosimetrie innerhalb der vergangenen Jahre an Bedeutung und Aufmerksamkeit gewonnen hat. Ein wichtiges Teilgebiet der Dosimetrie ist die Thermolumineszenzdosimetrie. Dabei wird das bekannte physikalische Phänomen der Lumineszenz, also das Auftreten von Leuchterscheinungen unterhalb der Glühtemperatur eines Körpers, zu dosimetrischen Zwecken ausgenutzt. Das Verfahren beruht auf der Anregung metastabiler Niveaus im Thermolumineszenzmaterial durch ionisierende Strahlung. Diese metastabilen Niveaus können durch thermische Anregung unter Emission von Licht geleert werden.

Thermolumineszenz findet neben der Dosimetrie auch in vielen weiteren Gebieten Anwendung, so z.B. in der Alterbestimmung im Rahmen der Archäologie. Dabei wird der Thermolumineszenzeffekt genutzt, um die durch radioaktive Umgebungstrahlung aufgenommene Dosis von Quarz- und Feldspatmineralien, die sich zur Thermolumineszenz eignen, zu bestimmen. Aus dem Quotienten aus der bestimmten Dosis und der Dosisleistung der Umgebungsstrahlung kann eine Aussage über das Alter des Materials getroffen werden.

Um den Studenten der Universität Münster den Effekt der Thermolumineszenz im Fortgeschrittenen Praktikum näher bringen zu können, wurde 2010 im Rahmen der Diplomarbeit von Stefan Korsten ein Aufbau zur Thermolumineszenzdosimetrie entworfen und anschliessend von Michèle Neumann während der Arbeiten zu ihrer Bachelorarbeit verbessert.

Die während des Praktikums mit dem zur Verfügung gestellten Aufbau erreichten Ergebnisse lassen allerdings gerade im Hinblick auf die Genauigkeit der Messungen bzw. die Reproduzierbarkeit aufeinanderfolgender Messungen einige Wünsche unerfüllt. Aus diesem Grund soll die Reproduzierbarkeit der Messergebnisse des Aufbaus zur Thermolumineszenzdosimetrie im Rahmen dieser Bachelorarbeit systematisch untersucht werden. Dabei werden unterschiedliche Faktoren des Messverfahrens theoretisch und in der Praxis auf ihren Einfluss auf die Reproduzierbarkeit der Messwerte untersucht, um ein verändertes Messverfahren zu entwickeln, das eine höhere Reproduzierbarkeit gewährleistet. Abschliessend soll die auf diese Weise ermittelte maximale Reproduzierbarkeit des Aufbaus mit der gesetzlich vorgeschriebenen Reproduzierbarkeit, die im Rahmen professioneller Dismessungen erreicht werden muss, verglichen werden, um festzustellen, ob Abweichungen zu professionellen Aufbauten bestehen und wenn ja, wie groß diese sind.

2 Theoretische Einführung

Jeder Körper, dessen Temperatur T oberhalb des absoluten Nullpunktes ($T = 0\text{ K}$) liegt, emittiert elektromagnetische Strahlung, die sogenannte Schwarzkörperstrahlung. Ein typisches Beispiel für Schwarzkörperstrahlung ist das Emissionsspektrum einer Glühlampe. Je nach Temperatur des Glühfadens verändert sich der Anteil der emittierten Strahlung, die im sichtbaren Bereich liegt und damit die sichtbare Intensität. Auch die Sonne strahlt nahezu wie ein schwarzer Körper. Dabei liegt die Oberflächentemperatur der Sonne bei ca. 5800 K , die höchste Intensität wird bei einer Wellenlänge von ca. $\lambda = 500\text{ nm}$ emittiert [1]. Das menschliche Auge ist in der Lage elektromagnetische Strahlung mit Wellenlängen zwischen 380 nm und 780 nm [2] als sichtbares Licht wahrzunehmen. John William Draper fand 1847 heraus, dass nahezu alle Festkörper ab einer Temperatur von 798 K , dem nach ihm benannten Draper-Punkt, für das menschliche Auge sichtbar Schwarzkörperstrahlung emittieren [3]. Unterhalb dieser Temperatur liegt der größte Teil der emittierten Strahlung im für den Menschen nicht sichtbaren Infrarotbereich.

Die Intensität u dieser Strahlung hängt sowohl von der Wellenlänge λ des Lichtes als auch von der Temperatur T des Körpers ab und wird durch das Planck'sche Strahlungsgesetz beschrieben [1]:

$$u(\lambda, T) = \frac{8 \cdot \pi \cdot h \cdot c \cdot \lambda^{-5}}{e^{\frac{h \cdot c}{\lambda \cdot k_B \cdot T}} - 1} . \quad (2.1)$$

Die Konstante h ist das Planck'sche Wirkungsquantum, k_B bezeichnet die Boltzmann-Konstante.

Beobachtet man unterhalb dieser kritischen Temperatur von 798 K Leuchterscheinungen, so spricht man von Lumineszenz.

2.1 Lumineszenz

Das Wort Lumineszenz entstammt dem Lateinischen und bedeutet soviel wie „kaltes Licht“, also sichtbares Licht, das von einem Körper mit einer Temperatur unterhalb des Draper-Punktes emittiert wird.

Der Begriff Lumineszenz kann je nach Art der Anregung in weitere Bereiche gegliedert werden. Mögliche Anregungen sind z.B. chemische Reaktionen (Chemolumineszenz), Beschuss mit Elektronen (Kathodolumineszenz) oder optische Stimulation (optisch stimulierte Lumineszenz, kurz OSL). Eine besondere Form der Chemolumineszenz ist die Biolumineszenz, das Phänomen, das für Leuchterscheinungen von Lebenwesen verantwortlich ist (z.B. bei Glühwürmchen). Die Emission von Licht nach thermischer Anregung (Thermolumineszenz) nimmt eine zentrale Rolle in den Überlegungen dieser Bachelorarbeit ein, und soll im nachfolgenden Kapitel genauer behandelt werden.

Der Vorgang der Lumineszenz lässt sich wie folgt erklären: Zunächst führt die Absorption einer Energie dazu, dass der betrachtete Körper einen energetischen Zustand außerhalb des Gleichgewichtes einnimmt. Anschliessend fällt der Körper unter Emission von Licht in den energetisch günstigeren Grundzustand zurück. Dabei lässt sich die Lumineszenz noch in Fluoreszenz und Phosphoreszenz unterscheiden. Von Fluoreszenz spricht man dann, wenn die Emission von Licht

innerhalb von 10ns nach der Absorption der Anregungsenergie geschieht. Phosphoreszenz bezeichnet demgegenüber alle Lumineszenzen, bei denen der Zeitraum zwischen Anregung und Emission oberhalb von 10ns liegt. Geschieht die Emission innerhalb von 100 µs nach Anregung, spricht man von kurzlebiger Phosphoreszenz, oberhalb dieser Zeitspanne spricht man von langlebiger Phosphoreszenz. Mit einer Zeitspanne von Minuten bis vielen Jahren liegt die Thermolumineszenz im Bereich der langlebigen Phosphoreszenzen.

2.2 Thermolumineszenz

Die Thermolumineszenz bezeichnet ein Teilgebiet der Lumineszenz, bei der thermische Anregung eines Körpers, der sich außerhalb seines energetischen Grundzustandes befindet, zur Emission von Licht und der gleichzeitigen Abregung des Körpers in seinen Grundzustand führt. Dabei lässt sich der Prozess der Thermolumineszenz in drei Teilprozesse untergliedern:

- 1) Die Absorption einer Anregungsenergie (z.B. durch ionisierende Strahlung) führt dazu, dass die Hüllelektronen der Atome des Festkörpers diskrete angeregte Zustände einnehmen.
- 2) Die Elektronen gehen strahlungsfrei in sog. Haftstellen über. Die dabei freiwerdende Energie wird an das Kristallgitter abgegeben.
- 3) Die Zufuhr thermischer Energie führt zur Abregung der Haftterme unter Emission von Licht.

Eine genauere Erklärung liefert das Bändermodell. In einem elektrisch nicht leitenden Festkörper (und nur solche sind für die Thermolumineszenz geeignet) sind Valenz- und Leitungsband durch eine Bandlücke voneinander getrennt. In jedem realen Kristall sind Fehler im Gitter, sog. Defektzentren vorhanden. Dabei kann es sich um Leerstellen im Gitter, Fremdatome oder Zwischen-gitteratome handeln. Bei Materialien, die extra für die Thermolumineszenz hergestellt werden, können Fremdatome durch Dotierung eingefügt werden. Im Bändermodell (siehe Abb. 2.1) führen diese Defektzentren zu Aktivator- und Haftterminen, die in der Bandlücke liegen. Aktivatorterme resultieren dabei aus Kristallfehlern mit einem positiven Ladungsdefizit, Haftterme aus solchen mit negativem Ladungsdefizit.

Im thermischen Gleichgewicht bei Zimmertemperatur, also im Grundzustand, sind sowohl das Valenzband als auch die Aktivatorterme besetzt, während die Haftstellen und das Leitungsband nicht von Elektronen besetzt sind (1). Wird Energie zugeführt (z.B. in Form von ionisierender Strahlung), die größer als die Bandlücke ist, so werden Elektronen aus dem Valenz- in das Leitungsband angehoben. Dadurch entstehen freie Stellen im Valenzband, sogenannte Löcher. In den meisten Fällen rekombinieren diese Löcher wieder mit den Elektronen im Leitungsband unter Emission eines Photons. Ein kleiner Teil der Löcher rekombiniert allerdings mit einem Elektron aus den Aktivatorterminen, sodass frei bewegliche Elektronen im Leitungsband existieren (2). Diese können sich solange frei im Kristall bewegen, bis sie von einem Haftterm eingefangen werden. Nach der Energiezufuhr (durch Bestrahlung) sind also die meisten Elektronen wieder in das Valenzband zurückgefallen, einige Elektronen besetzen jedoch die Haftterme, während eine entsprechende Anzahl an Aktivatorterminen unbesetzt bleibt (3). Die Bindungsenergie dieser Haftterme ist zu groß, als dass ein Elektron, das einen Haftterm besetzt, mit einem unbesetzten Aktivatorterm rekombinieren könnte. Wird aber von außen Energie in Form von Wärme, also thermischer Anregung hinzugeführt, so können die die Haftstellen besetzenden Elektronen ins Leitungsband angehoben werden und von dort aus mit den unbesetzten Aktivatorterminen rekombinieren. Dabei werden Photonen emittiert (4). Je niedriger das Energieniveau der Haftterme liegt, d.h. desto größer die Differenz zwischen den Energieniveaus von Haftterm und Leitungsband ist, desto fester ist die Bindung des Elektrons im Haftterm und dementsprechend größer die Lebensdauer dieses Zustandes.

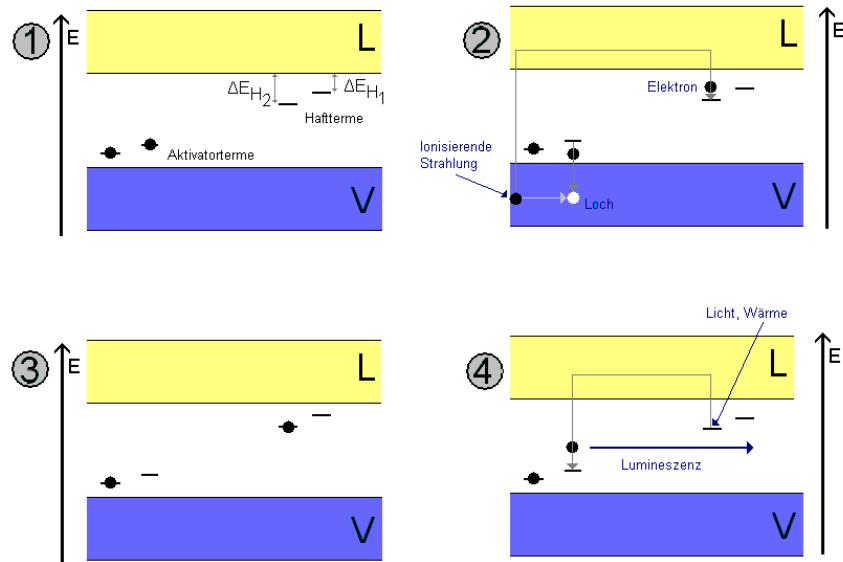


Abbildung 2.1: Thermolumineszenz im Bändermodell: (1) Im Grundzustand sind das Valenzband und die Aktivatorterme besetzt, die Haftstellen und das Leitungsband sind unbesetzt. (2) Energiezufuhr (durch ionisierende Strahlung), die größer ist als die Bandlücke, führt dazu, dass Elektronen aus dem Valenz- ins Leitungsband angehoben werden. Dadurch entstehen Löcher im Valenzband, die zu einem geringen Teil mit Elektronen der Aktivatorterme rekombinieren. (3) Nach der Energiezufuhr existieren unbesetzte Aktivatorterme und besetzte Haftstellen. (4) Energiezufuhr durch Licht oder Wärme führt zu einer Anhebung von Elektronen aus den Haftstellen ins Leitungsband mit anschliessender Rekombination mit den Aktivatorterme unter Aussendung von Licht.

Die mittlere Lebensdauer eines Elektrons in einem Haftterm kann durch die Boltzmann-Statistik ausgedrückt werden [7]:

$$\tau = s^{-1} \cdot e^{\frac{\Delta E}{k_B \cdot T}} . \quad (2.2)$$

s wird dabei als Sprungfaktor bezeichnet, k_B ist die Boltzmann-Konstante, ΔE die Energiedifferenz zwischen Haftterm und Leitungsband und T die Temperatur. Eine Erhöhung der Temperatur führt also zu einer Verringerung der mittleren Lebensdauer der einzelnen Haftterme. Wird die Temperatur schrittweise erhöht, entleeren sich die einzelnen Haftterme gemäß ihrer Energie nacheinander unter Emission von Licht.

Das Phänomen der Thermolumineszenz kann ausgenutzt werden, um die Dosis radioaktiver Strahlung zu messen. Die Bestimmung einer Strahlungsdosis im Rahmen des Strahlenschutzes wird als Dosimetrie bezeichnet.

2.3 Radioaktivität & Dosimetrie

Radioaktivität spielt eine große Rolle in unserer heutigen Gesellschaft, sei es in der Forschung, in der Energieversorgung oder in der Politik. Der Begriff Radioaktivität bezeichnet die Eigenschaft

eines Atomkerns unter Aussendung von Strahlung in einen anderen Kern zu zerfallen. Dabei kann der Begriff „Strahlung“ sowohl Teilchen- als auch elektromagnetische Strahlung bezeichnen. Man unterscheidet zwischen drei Zerfällen, dem α -, β - und γ -Zerfall. Andere mögliche Prozesse sind z.B. Protonen-, sowie Neutronenemission oder spontane Kernspaltung.

Unabhängig von der Zerfallsart kann jeder radioaktive Zerfall über das sogenannte Zerfallsgesetz beschrieben werden. Dabei gilt, dass die Aktivität A einer Quelle, d.h. die Anzahl der Zerfälle pro Sekunde, proportional zur Anzahl N der vorhandenen Kerne ist. Die Proportionalitätskonstante wird Zerfallswahrscheinlichkeit oder auch Zerfallskonstante genannt. Es ergibt sich:

$$A = \lambda N = -\frac{dN}{dt} . \quad (2.3)$$

Die Separation der Variablen und anschliessende Integration führt auf das Zerfallsgesetz:

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} . \quad (2.4)$$

Dabei bezeichnet $N(t)$ die Anzahl der noch nicht zerfallenen Kerne, N_0 ist die Zahl der Kerne, die zur Zeit $t = 0$ vorhanden war. λ ist die bereits erwähnte Zerfallskonstante, wobei $\lambda = \frac{1}{\tau}$ gilt, τ bezeichnet die mittlere Lebensdauer des Kerns. Mit $A = -\frac{dN}{dt}$ folgt dann für die Aktivität A zum Zeitpunkt t :

$$A(t) = \lambda \cdot N_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} = A_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} \quad \text{mit} \quad A_0 = \lambda \cdot N_0 . \quad (2.5)$$

Die Halbwertszeit $T_{1/2}$ einer radioaktiven Quelle ist definiert als die Zeit, bei der die Aktivität auf die Hälfte des ursprünglichen Maßes abgefallen ist, bzw. analog die Zeit, bei der die Hälfte der Kerne zerfallen ist:

$$\frac{A_0}{2} = A_0 \cdot e^{-\lambda \cdot T_{1/2}} .$$

Damit ergibt sich für die Halbwertszeit:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} = \ln 2 \cdot \tau . \quad (2.6)$$

Die Einheit der Aktivität ist das Becquerel (Bq), dabei entspricht 1 Bq einem Zerfall pro Sekunde. Die Aktivität einer radioaktiven Quelle gibt also an, wie rapide ein Stoff zerfällt, ist allerdings noch nicht das gewünschte Maß für die Gefährlichkeit einer radioaktiven Quelle für den Menschen, es können noch keine Aussagen über potentielle biologische Schäden getroffen werden. Die dafür erforderliche Größe ist allerdings mit der Aktivität verknüpft und wird als Dosis bezeichnet. Der Dosis-Begriff soll im nachfolgenden Kapitel genauer erklärt werden.

2.3.1 Dosis & Äquivalentdosis

Die Aktivität einer radioaktiven Quelle sagt allein noch nichts über die mit dieser Quelle verbundenen Strahlenrisiken aus, da unterschiedliche Quellen unterschiedliche Strahlungsarten und unterschiedliche Strahlungsenergien aufweisen, die zu unterschiedlichen Energiedepositionen im Körper führen. Dabei ist die im Körper deponierte Energie E_D ein Maß dafür, wie gefährlich die Strahlung in Hinsicht auf biologische Schäden ist. Die deponierte Energie entspricht der eingeschossenen Energie E_E abzüglich der austretenden Energie E_A , sowie der durch Strahlung im Körper hervorgerufenen Reaktionen gewonnene Energie E_Q :

$$E_D = E_E - E_A + E_Q \quad . \quad (2.7)$$

Die bereits genannte Energiedosis D ist als die pro infinitesimale Masseneinheit dm absorbierte Energie dE_D definiert:

$$D = \frac{dE_D}{dm} = \frac{1}{\rho} \cdot \frac{dE_D}{dV} \quad . \quad (2.8)$$

Die Einheit der Dosis ist das Gray [Gy], dabei entspricht 1 Gy einer Energiedeposition von einem Joule pro kg Masse des bestrahlten Körpers.

Analog zur Definition der Dosis kann eine Dosisleistung als Dosis pro Zeiteinheit definiert werden:

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt} \quad . \quad (2.9)$$

Die Einheit der Dosisleistung ist dementsprechend $1 \frac{\text{Gy}}{\text{s}}$. Geht man von einer punktförmigen Strahlungsquelle aus, deren emittierte Strahlung in Luft nur wenig abgeschwächt wird, so kann die Dosisleistung wie folgt angenähert werden

$$\dot{D} = \Gamma \cdot \frac{A}{r^2} \quad . \quad (2.10)$$

Neben der Aktivität A müssen bei der Berechnung der Strahlungsdosis auch der Abstand r von der Strahlungsquelle und eine spezifische Strahlungskonstante Γ in Betracht gezogen werden. Die spezifische Strahlungskonstante wird in der Einheit $\frac{\text{Gy} \cdot \text{m}^2}{\text{s} \cdot \text{Bq}}$ angegeben und hängt sowohl von der Strahlungsart als auch von der Strahlungsenergie ab.

Entscheidend für die Abschätzung biologischer Schäden, die durch radioaktive Strahlung verursacht werden, ist die Energiedeposition der Strahlung im Körper eines Lebewesens. Unterschiedliche Strahlungsarten weisen unterschiedliche Wirkungsquerschnitte bei der Wechselwirkung mit Materie auf, sodass die Energiedeposition pro Weglängeneinheit $\frac{dE}{dx}$ je nach Strahlungsart und -energie variiert. Bei geringer Energiedeposition pro Weglängeneinheit kann die Strahlung in den Körper ein- und wieder austreten, ohne größere Mengen Energie zu deponieren, der biologische Schaden ist dann klein. Bei größeren $\frac{dE}{dx}$ wird mehr Energie im Körper deponiert, unter Umständen kann die gesamte Strahlungsenergie auf einer kurzen Wegstrecke abgegeben werden, die biologischen Schäden würden in dem Fall maximiert. Um diesen Überlegungen im Rahmen des Dosisbegriffes genüge zu tun, wird die sogenannte Äquivalentdosis H eingeführt, die proportional

zur Dosis D ist, sich von dieser jedoch durch den sogenannten Strahlungsgewichtungsfaktor q unterscheidet, der die zuvor geschilderten Überlegungen berücksichtigt, es gilt

$$H = q \cdot D \quad . \quad (2.11)$$

Analog gilt für die Äquivalentdosisleistung \dot{H} :

$$\dot{H} = \frac{dH}{dt} = q \cdot \dot{D} \quad . \quad (2.12)$$

Die Einheit der Äquivalentdosis ist das Sievert (Sv), die Einheit der Äquivalentdosisleistung dementsprechend $1\frac{\text{Sv}}{\text{s}}$. Die verschiedenen Werte für den Strahlengewichtungsfaktor q finden sich in Tabelle 2.1.

Art der Strahlung	Strahlungsenergie	Strahlengewichtungsfaktor q
Photonen/ γ -Quanten	beliebig	1
e^-	beliebig	1
e^+	beliebig	1
Neutronen	$E_n < 10\text{keV}$ $10\text{keV} < E_n < 100\text{keV}$ $100\text{keV} < E_n < 2\text{MeV}$ $2\text{MeV} < E_n < 20\text{MeV}$ $E_n > 20\text{MeV}$	5 10 20 10 5
α -Teilchen	beliebig	20

Tabelle 2.1: Strahlungsgewichtungsfaktoren für unterschiedliche Strahlungsarten [10].

Photonen, Elektronen und Positronen weisen dabei die geringsten Gewichtungsfaktoren auf, schwere Partikel wie α -Teilchen oder Neutronen liefern bei gleicher Dosis eine bis zu 20 mal größere Äquivalentdosis. Ist ein Körper mehreren Strahlungsarten ausgesetzt, so kann die Gesamtäquivalentdosis als Summe der einzelnen Äquivalentdosen berechnet werden:

$$H_{\text{ges}} = \sum_i H_i \quad . \quad (2.13)$$

Wenn im Nachfolgenden über den Begriff Dosis gesprochen wird, ist immer die Äquivalentdosis in Sievert gemeint. Um die Dosis, also die Menge an radioaktiver Strahlung, der ein Gegenstand oder Körper ausgesetzt ist, bestimmen zu können, werden als Messinstrumente die sogenannten Dosimeter eingesetzt.

2.3.2 Dosimeter

Mit dem Begriff Dosimeter werden demnach Messsysteme bezeichnet, die zur Ermittlung einer Strahlungsdosis dienen. Zu einem solchen Messsystem zählen neben der eigentlichen Messsonde, die radioaktiver Strahlung ausgesetzt wird, auch die zur Auswertung benötigten Geräte und Programme. Es gibt einige verschiedene Dosimetertypen, beispielsweise das Filmdosimeter, bei dem die Dosis über die Schwärzung eines Messfilms bestimmt wird, oder das Stabdosimeter, das nach dem Prinzip der Ionisationskammer funktioniert. Dabei wird die Ionisation von Atomen innerhalb

einer Ionisationskammer dazu genutzt, einen Kondensator zu entladen. Die noch vorhandene Ladung im Kondensator ist dann ein Maß für die Dosis. Ein weiteres häufig eingesetztes Verfahren ist die Thermolumineszenzdosimetrie, die nachfolgend tiefergehend erläutert werden soll.

2.4 Thermolumineszenzdosimetrie

Bei der Thermolumineszenzdosimetrie (oder kurz: TLD) wird der zuvor geschilderte Effekt der Thermolumineszenz ausgenutzt, um eine Strahlungsdosis messen zu können. Dabei wird ein Kristall verwendet, in den mittels Dotierung gezielt Aktivatorterme und Haftstellen eingefügt wurden. Trifft ionisierende Strahlung auf den Kristall, so wird Energie an diesen abgegeben. Diese Energie führt, wie in Abschnitt 2.2 geschildert, zu einer Anregung der Valenzelektronen ins Leitungsband, wobei einige Elektronen in den Haftstellen eingefangen werden. Mit steigender Energieabgabe an den Kristall, also mit steigender Dosis, steigt die Anzahl der in Hafttermen gefangenen Elektronen. Über thermische Anregung, also eine Erhöhung der Temperatur, können diese Elektronen dann in einem Auslesevorgang zurück ins Leitungsband und von dort ins Valenzband gelangen, wobei Photonen emittiert werden. Je nach Energiedifferenz zwischen Haftterm und Leitungsband werden die verschiedenen Haftstellen bei unterschiedlichen Temperaturen geleert. Die Anzahl der emittierten Photonen ist verbunden mit der Anzahl der in Hafttermen gefangenen Elektronen und damit eine messbare Größe für die Dosis, derer der Kristall ausgesetzt war. Zur Bestimmung der Dosis mit Hilfe dieser Überlegungen muss aus der messbaren Intensität I der Photonen während des Auslesevorgangs die Dichte der besetzten Haftterme n bestimmt werden [7]:

Für die Intensität während des Auslesevorgangs gilt:

$$I = -c \frac{dn}{dt} . \quad (2.14)$$

Dabei bezeichnet c eine im Rahmen einer Kalibrierung zu bestimmende Konstante.

Gleichung 2.14 ist wie folgt zu deuten: pro infinitesimalem Zeitintervall dt werden während des Auslesevorgangs dn Elektronen aus den Haftstellen unter Emission eines oder mehrerer Photonen abgeregt. Die Anzahl der emittierten Photonen entspricht dann der Intensität. Integration von Gleichung 2.14 über die Zeit liefert dann:

$$n(t) - n_{\infty} = \int_t^{\infty} I dt' . \quad (2.15)$$

Wenn n_{∞} die Dichte besetzter Haftterme zur Zeit $t = \infty$ ist, und davon ausgegangen wird, dass während des Auslesevorgangs alle Haftterme geleert werden, so ist $n_{\infty} = 0$ und damit

$$n(t) = \int_t^{\infty} I dt' . \quad (2.16)$$

Wird während des Auslesevorgangs eine konstante Heizrate verwendet, so gilt $T(t) = const \cdot t$ und somit

$$n(T) = \frac{1}{\beta} \int_T^{\infty} I(T') dT' . \quad (2.17)$$

Dabei entspricht β der Heizrate. Die Dichte der besetzten Haftterme bei der Temperatur T ist also proportional zur Fläche unter der Intensitätsverteilung ab der Temperatur T . Betrachtet man einen einzelnen Peak bei der Temperatur T_m in der Intensitätsverteilung, so gilt für die Dichte des Haftterms, dessen Abregung in diesem Peak resultiert, näherungsweise

$$n = \frac{1}{\beta} \int_{T_i}^{T_f} I dT' \quad \text{mit} \quad T_i < T_m < T_f . \quad (2.18)$$

Dabei bezeichnet T_i die Temperatur, ab der sich dieser Peak vom Untergrund abhebt, T_f die Temperatur bei der die Intensität wieder ein Minimum erreicht. Diese Näherung ist dann legitim, wenn die Intensität des Peaks im unendlichen gegen Null geht. Da die Konzentration der besetzten Haftstellen proportional zur Strahlungsdosis ist, der der Kristall ausgesetzt war, so folgt aus Gleichung 2.18

$$D \propto \int_{T_i}^{T_f} I dT' . \quad (2.19)$$

Damit lässt sich aus der Gesamtanzahl der emittierten Photonen in einem bestimmten Temperaturintervall $\Delta T = T_f - T_i$ eines Thermolumineszenz-Peaks die Dosis bestimmen, mit der der Kristall bestrahlt wurde, wenn die Proportionalitätskonstante bekannt ist. Diese Konstante kann über eine Eichmessung mit einer bekannten Dosis bestimmt werden.

Aus der Funktionsweise der Thermolumineszenzdosimetrie lassen sich einige Anforderungen an das Material folgern, das zur Dosimetrie verwendet werden soll [7]:

- Die Haftstellenkonzentration muss genügend groß sein. Gleichzeitig wird eine große Lichtausbeute beim Rekombinationsprozess benötigt.
- Die besetzten Haftstellen sollten zeitlich und thermal stabil sein, damit zufällige Abregungen vor dem Messvorgang vernachlässigbar sind.
- Um die Auswertung zu erleichtern, sollten die einzelnen Thermolumineszenzpeaks möglichst voneinander abgrenzbar sein.
- Der Hauptpeak, also der Peak mit der größten Intensität sollte sich bei einer Temperatur unterhalb von 250 °C abregen, damit durch Wärmestrahlung bedingte Störeffekte unterdrückt werden.
- Die Materialeigenschaften sollten von umweltbedingten Faktoren wie Luftfeuchtigkeit oder Lichteinfall nicht beeinflusst werden.
- Strahlungsschäden sollten am Material erst bei Dosen auftreten, die außerhalb des Nutzungsbereichs liegen.
- Der Wirkungsquerschnitt für die Wechselwirkung von Strahlung mit dem verwendeten Material sollte dem Wirkungsquerschnitt für Wechselwirkung dieser Strahlung mit organischem Gewebe möglichst ähnlich sein. Da der Wirkungsquerschnitt oft von der Ladungszahl Z des wechselwirkenden Materials abhängt, sollte die effektive Ordnungszahl des Materials möglichst der effektiven Ordnungszahl organischen Gewebes entsprechen.
- Der Zusammenhang zwischen Dosis und Peakinhalt sollte über eine möglichst große Dosisskala linear sein.

Es muss dabei beachtet werden, dass kein Material alle Eigenschaften erfüllen kann, es muss vielmehr ein Kompromiss gefunden werden. Ein Material, das häufig Anwendung in der Thermolumineszenzdosimetrie findet, ist Lithiumfluorid.

2.4.1 Lithiumfluorid

Für die vorliegende Bachelorarbeit wurden die TLD-100 Kristalle der Firma Harshaw Chemical Co. verwendet. Diese bestehen aus einer Lithiumfluoridverbindung, dotiert mit Magnesium und Titan (kurz: LiF:Mg,Ti). Lithiumfluorid gehört zu den am weitesten verbreiteten Materialien in der Thermolumineszenzdosimetrie, da es einen guten Kompromiss zwischen den zuvor geschilderten Anforderungen bietet. Die effektive Ordnungszahl von Lithiumfluorid beträgt $Z = 8,14^1$ ($Z_{\text{organisch}} = 7,42$ [15]). Es besteht ein linearer Zusammenhang zwischen Dosis und Peakinhalt bis zu einer Dosis in der Größenordnung 1 Sv, der Hauptpeak liegt bei ca. 195 °C [16] und ist damit bei Zimmertemperatur sehr stabil. Allerdings weist Lithiumfluorid eine relativ komplizierte Haftstellenstruktur und damit eine komplexe Glühkurve auf, die neben dem Hauptpeak mindestens vier weitere Peaks aufweist, wobei die ersten drei thermisch nicht stabil sind und dementsprechend starken Schwankungen unterworfen sind.

Ein weiterer Vorteil von Lithiumfluorid ist die Tatsache, dass es sich neben der Messung einer Strahlungsdosis verursacht durch Elektronen oder Photonen auch für eine Messung der Strahlungsdosis, die aus Neutronenstrahlung resultiert, eignet. Dies liegt daran, dass die verwendeten sog. Albedo-Dosimeter aus zwei Paaren verschiedener LiF:Mg,Ti Kristalle bestehen. Ein Paar dieser Kristalle beinhaltet zu einem großen Teil das Isotop ^{6}Li , das andere Paar das Isotop ^{7}Li . ^{6}Li kann vom menschlichen Körper rückgestreute, thermische Neutronen über die Reaktion $^{6}\text{Li} + n \rightarrow \alpha + ^3\text{H}$ nachweisen. Die dabei entstehenden α -Teilchen bzw. ^3H -Kerne geben ihre Energie an den Kristall ab und können so nachgewiesen werden.

Die Analyse der Lithiumfluorid-Kristalle in Hinsicht auf die Bestimmung der erfahrenen Dosis erfolgt über sogenannte Glühkurven.

2.4.2 Glühkurven

Unter dem Begriff Glühkurve versteht man die Intensität des Lumineszenzlichtes in Abhängigkeit von der Temperatur. Abbildung 2.2 zeigt die Glühkurve eines Lithiumfluorid Kristalls, der vor der Bestrahlung und anschliessenden Messung auf unter -160°C abgekühlt und von dort aus aufgeheizt wurde.

¹Berechnung siehe Anhang

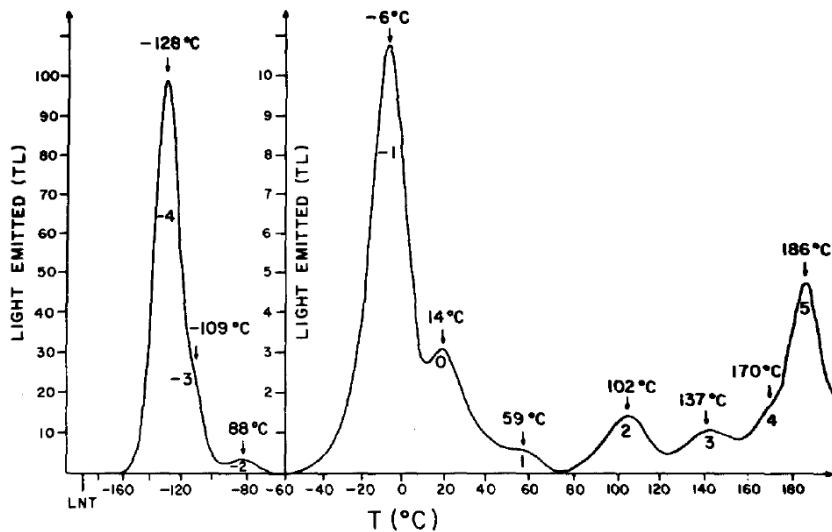


Abbildung 2.2: Glühkurve eines Lithiumfluorid-Kristalls, der vor Bestrahlung und Messung auf unter -160°C abgekühlt wurde. Die Ordinatenachse zeigt die Intensität der Glühkurve, die Abszissenachse die Temperatur in $^{\circ}\text{C}$. Es sind zehn Peaks zu erkennen, von denen sich fünf bei Temperaturen oberhalb der Zimmertemperatur wiederfinden [10].

Es sind zehn Peaks zu erkennen, von denen allerdings nur fünf Peaks bei Temperaturen oberhalb der Zimmertemperatur liegen, sodass bei Bestrahlungen und Messungen bei Zimmertemperatur lediglich diese Peaks auftreten können. Peak Eins ist thermisch stark instabil und hat bereits bei Zimmertemperatur eine derart große Abregungswahrscheinlichkeit, dass dieser Peak innerhalb von Minuten verschwindet und in den meisten bei Zimmertemperatur begonnenen Messungen nicht registriert werden kann. Die Peaks Zwei und Drei weisen ebenfalls eine signifikante thermische Instabilität auf, sodass ihr Peakinhalt je nach Zeitspanne zwischen Bestrahlung und Messung stark schwanken kann. Die Peaks Vier und Fünf sind thermisch stabil und weisen sehr große mittlere Lebensdauern auf. Peak Fünf wird auch als Hauptpeak bei Thermolumineszenzmessungen bezeichnet.

Gleichung 2.19 hat bereits gezeigt, dass sich die Dosis, die ein Dosimeter erfahren hat, aus dem Flächeninhalt unterhalb der Intensitätsverteilung bestimmen lässt. Um im Fall einer Glühkurve mit mehreren Thermolumineszenzpeaks eine möglichst gute Fitfunktion zu finden und gleichzeitig etwas über materialspezifische Größen wie die Aktivatorennergie der einzelnen Haftstellen zu lernen, ist es notwendig die Glühkurve in einzelne Peaks zu zerlegen und diese zu beschreiben. Dieser Vorgang nennt sich „CGDC: computerized glow curve deconvolution“ und wird bereits seit 1980 verwendet [7]. Seitdem wurden verschiedene Funktionen, wie z.B. Gaußverteilungen oder die PMC-Annäherung (PMC: Podgorsak-Moran-Cameron) verwendet, wobei die PMC-Annäherung die Form

$$I(I_M, E, T_M, T) = I_M \cdot e^{1+x-e^x} \quad \text{mit} \quad x = \frac{T - T_M}{T_M} \frac{E}{k_B \cdot T_M} \quad (2.20)$$

besitzt [11] und als erste Funktion den Parametersatz I_M , E , T_M und T verwendet. Dabei gibt I_M die Intensität im Maximum eines Peaks wieder, T_M die Temperaturposition dieses Maximums und E das Energieniveau der Haftstelle, während T als Variable in der Intensitätsverteilung eines einzelnen Peaks dient. Weiterführende Untersuchungen haben jedoch gezeigt, dass diese Funktion

keine besonders gute Annäherung an die experimentellen Daten darstellt.

Die Intensitätsverteilung eines einzelnen Thermolumineszenzpeaks lässt sich aus dem Randall-Wilkins-Modell [7] herleiten. Das Randall-Wilkins-Modell basiert auf einem einfachen Bändermodell, dargestellt in Abbildung 2.3.

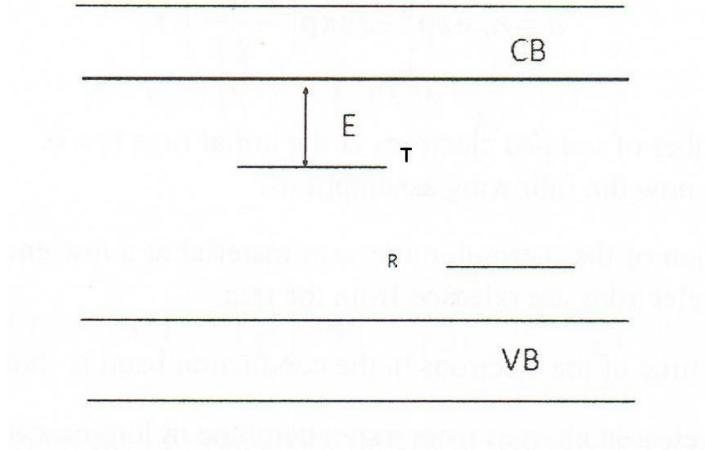


Abbildung 2.3: Randall-Wilkins Bändermodell: Bändermodell mit einer Haftstelle (T) und einem Rekombinationszentrum (R) [7].

Dabei existieren zwischen Valenz- (VB) und Leitungsband (CB) zwei weitere (metastabile) Energieniveaus: eine Haftstelle (T) und ein Rekombinationszentrum (R). Die Energiedifferenz zwischen Haftstelle und Leitungsband wird Aktivationsenergie genannt. Diese Energie muss aufgebracht werden, um ein Elektron, dass eine Haftstelle besetzt, ins Leitungsband anzuheben. Die Wahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit, dass ein Elektron eine Haftstelle bei der Temperatur T verlässt, ist durch Gleichung 2.2 gegeben als

$$p = \frac{1}{\tau} = s \cdot \exp\left(-\frac{E}{k_B \cdot T}\right) \quad . \quad (2.21)$$

Bei einer konstanten Temperatur nimmt die Anzahl in Haftstellen gefangener Elektronen n mit der Zeit ab:

$$\frac{dn}{dt} = -pn \quad . \quad (2.22)$$

Separation der Variablen, Integration und Annahme einer konstanten Heizrate der Form $\beta = \frac{dT}{dt}$ führt dann zu

$$\int_{n_0}^n \frac{dn}{n} = - \int_{t_0}^t p dt = - \left(\frac{s}{\beta}\right) \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT' \quad . \quad (2.23)$$

Daraus ergibt sich für die Anzahl der in Haftstellen gefangenen Elektronen bei der Temperatur T

$$n = n_0 \exp \left(-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp \left(-\frac{E}{kT'} \right) dT' \right) \quad . \quad (2.24)$$

Mit Gleichung 2.14 folgt dann für die Intensität eines einzelnen Thermolumineszenzpeaks in Abhängigkeit von der Temperatur:

$$I(T) = n_0 s \exp \left(-\frac{E}{kT} \right) \exp \left(-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp \left(-\frac{E}{kT'} \right) dT' \right) \quad . \quad (2.25)$$

Im Intensitätsmaximum $I_M(T_M)$ des Thermolumineszenzpeaks gilt $\frac{dI}{dT} = 0$. Mit $\frac{d \ln(I)}{dT} = \frac{1}{T} \frac{dI}{dT}$ folgt daraus der folgende Zusammenhang für den Sprungfaktor s , der es erlaubt die unbekannte Größe s durch die leicht zu bestimmenden Größen I_M und T_M zu ersetzen:

$$s = \frac{\beta \cdot E}{kT_M^2} \exp \left(\frac{E}{kT_M} \right) \quad . \quad (2.26)$$

Setzt man Gleichung 2.26 in Gleichung 2.25 ein, so ergibt sich für die Intensität der Zusammenhang

$$I(T) = \frac{n_0 \beta E}{kT_M^2} \exp \left(\frac{E}{kT_M} - \frac{E}{kT} \right) \cdot \exp \left(-\frac{E}{kT_M^2} \int_{T_0}^T \exp \left(\frac{E}{kT_M} - \frac{E}{kT'} \right) dT' \right) \quad . \quad (2.27)$$

Die in Gleichung 2.27 angegebene Beschreibung eines einzelnen Thermolumineszenzpeaks entspricht der von Horowitz und Yossian 1995 hergeleiteten Funktion [11]. Das Integral im Exponenten der Funktion ist analytisch nicht lösbar und kann nur numerisch berechnet werden. Unterschiedliche Programme zur Analyse der Glühkurven nutzen jeweils unterschiedliche Verfahren um das Integral

$$\int \exp \left(-\frac{E}{kT'} \right) dT' \quad (2.28)$$

zu lösen.

Das im Rahmen dieser Bachelorarbeit verwendete Programm nennt sich „GlowFit“ und nutzt den Ansatz

$$\int_{T_0}^T \exp \left(-\frac{E}{kT'} \right) dT' \approx \frac{E}{k} \int_x^\infty x'^{-2} \exp(-x') dx' = \frac{E}{k} \frac{1}{x} E_2(x) \quad . \quad (2.29)$$

Dabei wird die Starttemperatur der Messung T_0 als $T_0 = 0$ angenommen. Diese Näherung ist durchaus sinnvoll, da das Integral $\int_0^{T_0} \exp \left(-\frac{E}{kT'} \right) dT'$, das im Rahmen der Näherung hinzugefügt wurde, näherungsweise null ist, da die Funktion $\exp \left(-\frac{E}{kT} \right)$ für $T \ll T_M$ verschwindet, da E nach [7] in der Größenordnung $E = 20kT_M$ liegt. In Gleichung 2.29 wurde eine Substitution der Form $x := \frac{E}{kT}$ durchgeführt. Die Funktion $E_2(x)$ ist die zweite Exponential-Integral-Funktion, für die nach Quelle [12] gilt

$$E_2(x) = \alpha(x) \cdot \exp(-x) \quad \text{mit} \quad \alpha(x) = 1 - \frac{a_0 + a_1x + a_2x^2 + a_3x^3 + x^4}{b_0 + b_1x + b_2x^2 + b_3x^3 + x^4} \quad . \quad (2.30)$$

Die Werte der Konstanten a_i und b_i können in der Literatur nachgelesen werden.

Damit folgt für die Intensität eines einzelnen Thermolumineszenzpeaks die Verteilung [11]

$$I(T) = I_M \exp\left(\frac{E}{kT_M} - \frac{E}{kT}\right) \exp\left(\frac{E}{kT_M} \left(\alpha\left(\frac{E}{kT_M}\right) - \frac{T}{T_M} \exp\left(\frac{E}{kT_M} - \frac{E}{kT}\right) \alpha\left(\frac{E}{kT}\right)\right)\right). \quad (2.31)$$

Das Programm GlowFit (dargestellt in Abbildung 2.4) nutzt die in Gleichung 2.31 angegebene Funktion um die einzelnen Peaks innerhalb der Glühkurve anhand der Parameter E , I_M und T_M zu fitten. Dabei können bis zu zehn Peaks simultan an eine Glühkurve gefitted werden. Als Fitalgorithmus wird die Levenberg-Marquardt Methode verwendet. Dabei ist zu beachten, dass die Funktion der quadratischen Abweichungen χ^2 mehrere lokale Minima für unterschiedliche Fitparameter aufweist, da eine Verbindung der Parameter E und T_M besteht. Aus diesem Grund kann es bei der Analyse zu physikalisch nicht als sinnvoll zu erachtenden Ergebnissen für die Temperatur des Maximums T_M und die Aktivatorennergie E kommen, obwohl die Fitfunktion die Daten mathematisch sinnvoll beschreibt.

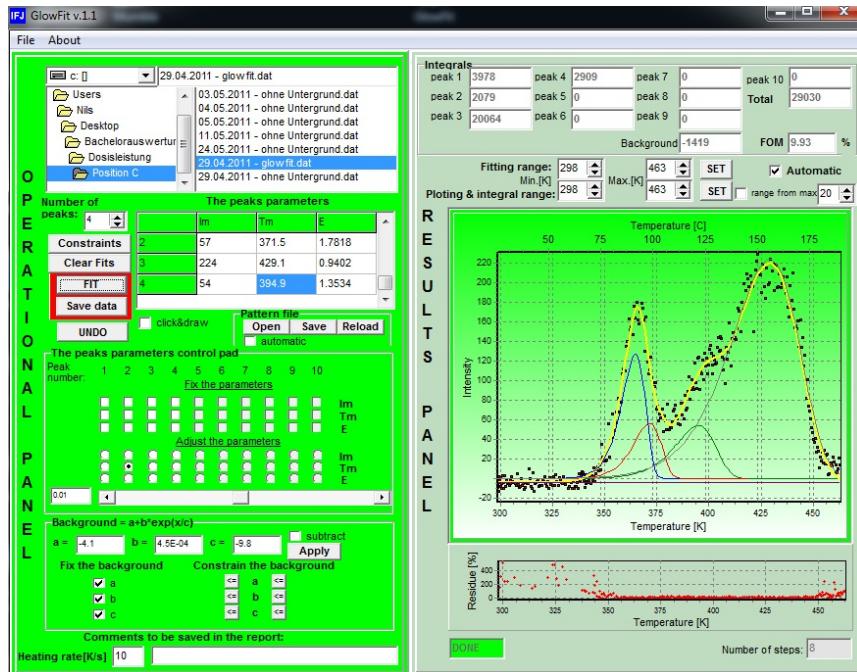


Abbildung 2.4: Das Programm GlowFit: Links kann die Datei mit den Messwerten eingelesen werden, darunter können die Startparameter des Fitvorgangs gewählt werden, des Weiteren kann eine Untergrundfunktion eingestellt werden. Die rechte Hälfte des Programms dient als Ausgabe, oben werden die einzelnen Peakinhalte wiedergegeben, darunter befindet sich eine Grafik der Glühkurve mit den einzelnen, gefitteten Peaks.

Um diesem Fehler vorzubeugen, ist es möglich einen beliebigen Fitparameter bei einem selbst definierten Wert festzusetzen und lediglich anhand der anderen Parameter zu fitten. Dies kann z.B. mit der Temperatur T_M durchgeführt werden, wenn man daran interessiert ist, die zu einem Peak gehörige Aktivatorennergie zu bestimmen.

Des Weiteren ist eine starke Abhängigkeit der Qualität des Fitvorgangs von der Wahl der Startparameter zu beobachten, die für nichtlineare Fitvorgänge typisch ist. Vor allem die Wahl des

Startparameter für die Temperatur des Maximums T_M ist entscheidend für die Konvergenz der Fitfunktion gegen den Datensatz.

Bevor es zur Vorstellung der Ergebnisse der systematischen Untersuchungen zur Reproduzierbarkeit kommt, folgt zunächst eine Beschreibung des experimentellen Aufbaus.

3 Experimenteller Aufbau

Ein Messaufbau zur Thermolumineszenzdosimetrie besteht im Wesentlichen aus der passiven Messeinheit sowie einem sog. TLD-Reader, der es ermöglicht die bestrahlte Messeinheit auszulesen und in Hinsicht auf die Dosis auszuwerten. Ein TLD-Reader lässt sich in zwei Grundbausteine untergliedern, die Leseeinheit, die die ausgesandten Lumineszenz-Photonen zählt und die Heizeinheit, die dafür sorgt, dass die Messeinheit während des Auslesevorgangs erhitzt wird. Die Leseinheit besteht meist aus einem Photomultiplier mitsamt Messequtronik, sowie einem Filter im Infrarotbereich, um Wärmestrahlung filtern zu können. Bei der Umsetzung der Heizeinheit gibt es im Wesentlichen zwei verschiedene Möglichkeiten:

1) Das Trägerheizverfahren:

Beim Trägerheizverfahren wird der Messkristall auf einem Träger fixiert. Dieser wird dann mit einem Heizkörper erhitzt. Dabei muss ein kontinuierlicher Wärmeübergang vom Träger auf den Messkristall gewährleistet sein. Ist der Träger verschmutzt oder der Messkristall uneben, so kann es zu Problemen beim Wärmeübertrag kommen.

2) Das Heizgasverfahren:

Beim Heizgasverfahren, das z.B. beim Harshaw 5500 Automatic Dosimetry Reader Anwendung findet¹, wird heißes Gas (meist Stickstoff) genutzt, um den Messkristall aufzuheizen. Dies ermöglicht auch bei unebenen Kristallen eine gleichmäßige Aufheizung. Das Heizgasverfahren findet in nahezu allen modernen TLD-Readern Anwendung, da es sehr präzise lineare Heizraten liefert. Des Weiteren sind sehr hohe Heizraten umsetzbar.

Der von Stefan Korsten im Rahmen einer Diplomarbeit 2010 aufgebaute Messstand (siehe [10]) arbeitet nach dem Heizträgerverfahren. Als Messkristalle werden TLD-100 LiF:Mg,Ti Kristalle der Firma Harshaw verwendet.

Nachfolgend wird zunächst die verwendete Messkammer vorgestellt, anschließend der zum Aufheizen verwendete Probenkopf. Bevor die Kristalle ausgeheizt werden, um die Glühkurve aufzunehmen, müssen sie jedoch bestrahlt werden. Dazu wird der sog. Bestrahlungsapparat verwendet.

3.1 Bestrahlungsapparat

Als Strahlungsquelle zur Bestrahlung der LiF-Kristalle wird eine ^{60}Co -Quelle verwendet. ^{60}Co zerfällt zu 99,88% per β^- -Zerfall in einen angeregten Zustand von ^{60}Ni . Dieser angeregte Zustand zerfällt dann unter Aussendung zweier γ -Quanten mit Energien von 1,17 MeV und 1,33 MeV in den Grundzustand von ^{60}Ni . Die Strahlungsquelle befindet sich im Zentrum eines Bestrahlungsapparates (abgebildet in Abb. 3.1).

Dieser Bestrahlungsapparat weist eine Bohrung im Zentrum auf, in der die stabförmige Quelle untergebracht ist, sowie jeweils acht Bohrungen, die in drei verschiedenen Abständen kreisförmig um das Zentrum herum angebracht sind. Diese Bohrungen können Probenröhrchen aufnehmen, in denen ein Kristall untergebracht werden kann. Kanäle in der Abschirmung des Strahlungsapparates sorgen dafür, dass die Kristalle am Boden der Röhrchen bestrahlt werden können. Die

¹[4]

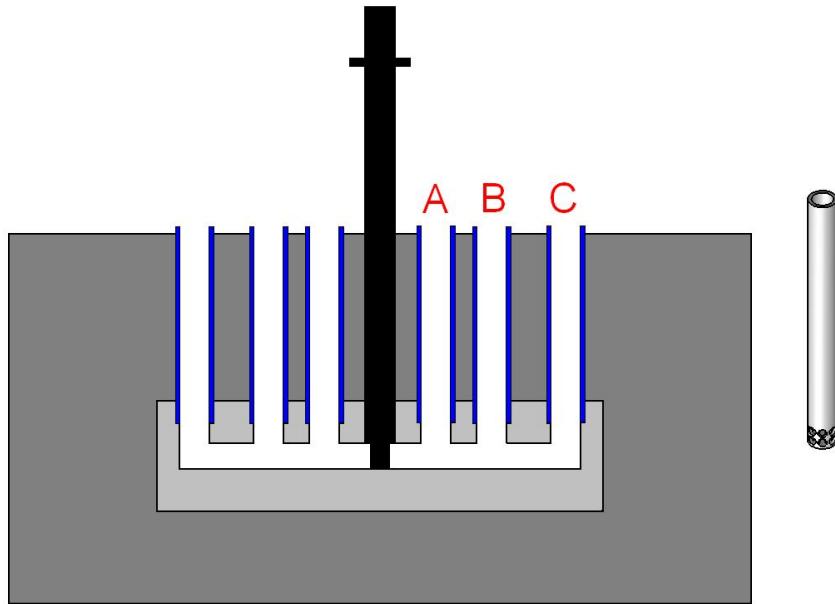


Abbildung 3.1: Links: Schnitt des Bestrahlungsapparats mit eingesetzter Stabquelle. Die verschiedenen möglichen Abstände sind mit A (1,5 cm), B (3 cm & C (5 cm) gekennzeichnet. Rechts: Probenrörchen der zu bestrahlenden Kristalle [10].

Abschirmung besteht aus einer Schicht Plastik, das dafür sorgt, dass die Elektronen der β^- -Strahlung beim Abbremsvorgang keine Bremsstrahlung aussenden, sowie Blei, um den Austritt der Strahlung aus dem Bestrahlungsapparat zu minimieren.

Nach der Bestrahlung müssen die Kristalle in der Messkammer ausgelesen werden.

3.2 Messkammer

Um die bestrahlten Lithiumflorid-Kristalle im Hinblick auf die abgestrahlten Thermolumineszenzphotonen untersuchen zu können, muss die Messkammer sowohl lichtdicht sein, als auch einen geeigneten Detektor beinhalten. Die Messkammer wurde aus Aluminium hergestellt und weist vier Öffnungen auf, wobei sich jeweils zwei dieser Öffnungen gegenüberliegen. Das Innere der Kammer wurde eloxiert. Die einzelnen Bauteile der Messkammer werden unter Verwendung von O-Ringen verbunden, wodurch gewährleistet wird, dass die Kammer licht- und vakuumdicht ist. Dies ist wichtig, damit sich das Thermolumineszenzsignal deutlich vom Untergrund abhebt. Als Detektor kommt ein MP1993 Channel Photomultiplier Module der Firma PerkinElmer zum Einsatz. Diese Art von Detektor nutzt den photoelektrischen Effekt: die Photonen treffen auf eine Photokathode, dabei werden Elektronen aus der Kathode gelöst und über eine Potentialdifferenz durch einen schmalen, mehrfach gekrümmten Kanal aus Halbleitermaterial beschleunigt. Treffen die Elektronen auf den Rand dieses Kanals, werden Sekundärelektronen herausgelöst, sodass beim Auftreffen der Elektronen auf die Anode ein Spannungspuls gemessen werden kann. Um sicherzustellen, dass nur die aus der Thermolumineszenz stammenden Photonen den Photomultiplier erreichen, wurden zwei Filter direkt vor dem Fenster zum Photomultiplier angebracht: ein TECHSPEC UV Fused Silica Window sowie ein CALFLEX C Wärmeschutzfilter, wobei letzterer dazu dient, das Infrarotlicht der Wärmestrahlung zu filtern, die beim Erhitzen des Probenkopfes entsteht. Abbildung 3.2 zeigt einen Schnitt der Messkammer mit eingesetztem Probenkopf, der im nachfolgenden Abschnitt im Detail beschrieben wird.

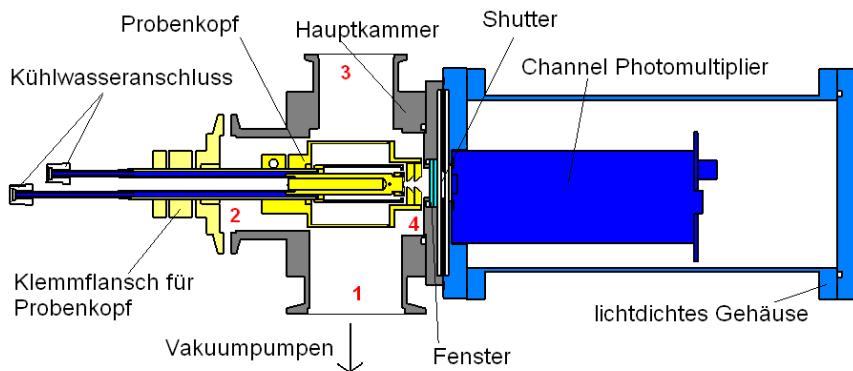


Abbildung 3.2: Schnitt der Probenkammer mit eingesetztem Probenhalter: Zu erkennen sind die Kühlwasseranschlüsse, der Probenkopf, die eloxierte Hauptkammer, das Schutzfenster und der Shutter vor dem ebenfalls erkennbaren Photomultiplier, der in einem lichtdichten Gehäuse untergebracht wurde [10].

Die Hauptkammer wird mit Hilfe einer Drehschieberpumpe sowie einer Turbopumpe vom Typ Pfeiffer TPH-170 evakuiert, um Streuungen der Thermolumineszenzphotonen an Gasmolekülen zu minimieren und gleichzeitig den Untergrund durch erhitzte Gasmoleküle möglichst gering zu halten.

3.3 Probenkopf

In Abbildung 3.3 ist ein Schnitt des Probenkopfes, der sich während einer Messung in der linken Öffnung der Messkammer befindet, dargestellt.

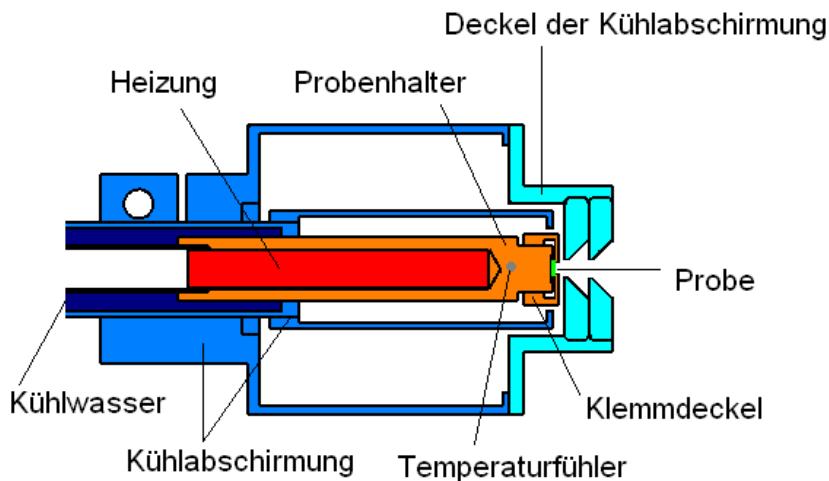


Abbildung 3.3: Schnitt des Probenkopfes, bestehend aus Heizelement (rot), Probenhalter inklusive Klemmdeckel (orange), Temperaturfühler (grau), Kühlabtschirmung (hellblau) inklusive Deckel (türkis), Kühlwasserzufuhr (dunkelblau) und Vertiefung für die Probe (grün) [10].

Der Probenkopf selbst besteht aus dem Probenhalter, auf den der Messkristall mit einem Deckel befestigt werden kann, einer Heizpatrone, die sich innerhalb des Probenhalters befindet, sowie einer

Kühlabschirmung. Da der Probenkopf ein elementarer Bestandteil des Messaufbaus und auch der weiterführenden Argumentation dieser Bachelorarbeit darstellt, werden dessen Bestandteile im Folgenden genauer erläutert.

- **Probenhalter:**

Der Probenhalter ist ein Zylinder aus Kupfer (orange), der am oberen Ende eine Vertiefung für den Messkristall sowie ein Schraubgewinde für einen Deckel aufweist. Innerhalb des Kupferzyinders befindet sich eine Heizpatrone (rot), die sich erhitzt, wenn ein Strom einen Heizdraht durchfließt. Die entstehende Wärme wird über eine Edelstahlkappe an den umgebenden Probenhalter abgegeben.

Des Weiteren befindet sich ein Temperaturfühler Pt100 der Firma Corrige innerhalb des Probenhalters. Dieser Temperaturfühler besteht aus einem Platinwiderstand, der von einem konstanten Strom durchflossen wird. Der Widerstand des Platindrahtes verändert sich mit der Temperatur und kann über die abfallende Spannung bestimmt werden. Aus dem Widerstand lässt sich dann die Temperatur bestimmen. Der Temperaturfühler ist in einer kleinen Öffnung unterhalb der Vertiefung für den Messkristall (grün) angebracht und kann mit einer Schraube an den Probenhalter gedrückt werden, um einen möglichst guten Temperaturkontakt zu gewährleisten. Am unteren Ende des Probenhalters ist ein weiteres Gewinde angebracht, auf das die innere Kühlabschirmung geschraubt werden kann.

- **Kühlabschirmung:**

Die Kühlabschirmung (hellblau) lässt sich in eine innere und eine äußere Kühlabschirmung unterteilen. Die innere Kühlabschirmung lässt sich direkt auf das am unteren Ende des Probenhalters befindliche Gewinde schrauben, die äußere Kühlabschirmung umgibt den kompletten Probenhalter und lässt sich mit einem Deckel (türkis) verschließen. Dieser Deckel besitzt oberhalb des Probenhalters eine Blende, aus der die Thermolumineszenzphotonen austreten und den Photomultiplier erreichen können. Die Kühlabschirmung besteht aus Kupfer und wurde mit einer dünnen schwarzen Farbschicht überzogen. Des Weiteren befindet sie sich in direktem Kontakt mit dem Kühlwasserkreislauf. Dadurch wird jegliche Wärme, die an die Kühlabschirmung abgegeben wird, abtransportiert, sodass eine Erwärmung des kompletten Probenkopfes und damit auch der Messkammer verhindert wird. Der aus Wärmestrahlung resultierende Untergrund wird dadurch auf ein Minimum reduziert.

3.4 Messprogramm

Das zur Aufzeichnung der Messwerte verwendete Messprogramm wurde von Stefan Korsten im Rahmen der Anfertigung seiner Diplomarbeit 2010 in LabView programmiert. Dabei stehen zwei verschiedene Ausführungen des Messprogramms zur Verfügung. Abbildung 3.4 zeigt die beiden verschiedenen Versionen.

Die eine Ausführung nimmt nicht nur die Messwerte (Zeit t in s, Temperatur T in °C und Intensität I in a.u.) auf, sie übernimmt auch die Steuerung der Heizleistung derart, dass diese immer so angepasst wird, dass die Abweichung von einer Sollheizkurve mit einer Steigung von 30 °C/min minimal bleibt. Die andere Ausführung ermöglicht es, über einen Regler die Prozentzahl der maximal einstellbaren Spannung zu regeln und somit eine feste Heizleistung einzustellen.

Der Schwerpunkt dieser Bachelorarbeit liegt in der Untersuchung der Reproduzierbarkeit der aufgenommenen Glühkurven. Die möglichen Faktoren, die einen merklichen Einfluss auf die Reproduzierbarkeit des Inhalts der Glühkurven haben könnten, werden im folgenden Kapitel beschrieben.

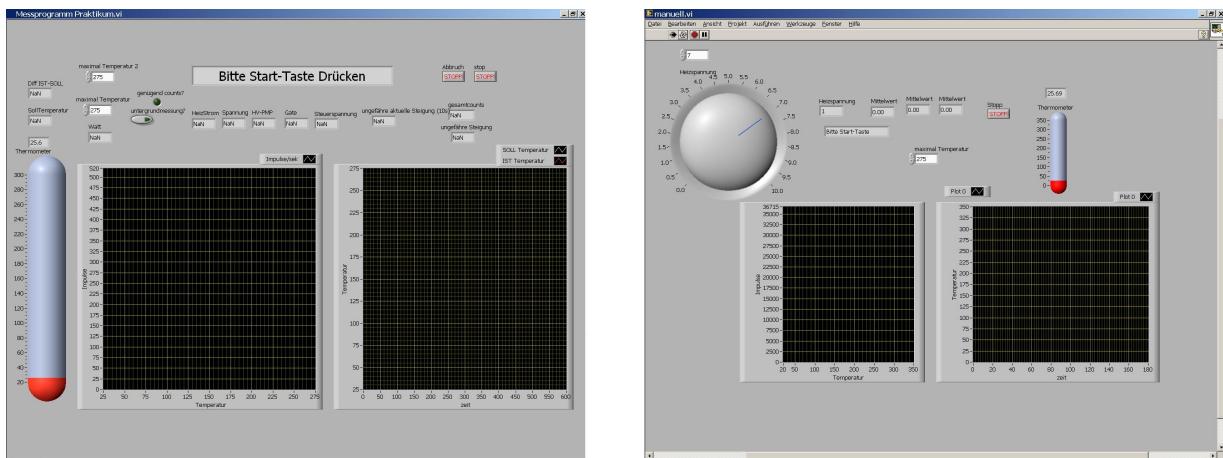


Abbildung 3.4: Messprogramm: Links: Computergesteuerte Heizleistung, die beiden Koordinatensysteme geben die Heizkurve und die Glühkurve wieder, desweiteren werden weitere Parameter der Messung (wie z.B. die Temperatur) angegeben. Rechts: Manuell geregelte Heizleistung, auch hier wird die Heiz- und die Glühkurve gezeigt. Der Regler am oberen linken Rand dient dazu, die Heizleistung manuell zu regulieren.

4 Mögliche begrenzende Faktoren der Reproduzierbarkeit

Die ISO-Norm 12794:2000(E) „Individual thermoluminescence dosimeters for extremities and eyes“ der „International Organization for Standardization“ [5] beschreibt die Anforderungen, die an Thermolumineszenz-Dosimeter gestellt werden. Dabei werden Anforderungen an wichtige Punkte wie die Homogenität eines Satzes von Kristallen, die Linearität zwischen dem TL-Signal und der dem Kristall ausgesetzten Dosis oder eben an die Reproduzierbarkeit gestellt. Im Fall der Reproduzierbarkeit fordert die Norm 12794:2000(E), dass der statistische Fehler für ein 95%-iges Konfidenzintervall eines ausgewerteten TL-Signals eines Kristalls, der mehrmals mit derselben Dosis bestrahlt wurde, nicht größer sein darf als 10%. Dieser Wert soll im Verlauf der Untersuchung der Reproduzierbarkeit herangezogen werden, um eine Aussage über die Qualität des Messaufbaus tätigen zu können.

Als mögliche begrenzende Faktoren kommen der gewählte Ausheizvorgang, die Wahl der Heizrate und die Dosisleistung in Betracht.

4.1 Ausheizvorgang

Annealing bezeichnet den Ausheizvorgang der zur Thermolumineszenz-Dosimetrie genutzten Kristalle. Im Gegensatz zum Auslesevorgang wird die Erwärmung des Kristalls beim Annealvorgang nicht genutzt, um ein Signal zu erzeugen, sondern vielmehr um unerwünschte (Rest-)Signale zu entfernen. Man unterscheidet zwischen Pre- und Post-Readout-Annealing, also in Ausheizvorgänge vor und nach dem eigentlichen Auslesen des Thermolumineszenz-Signals. Mit beiden Vorgängen werden unterschiedliche Ziele verfolgt, die im nachfolgenden genauer erläutert werden sollen.

4.1.1 Post-Readout-Annealing

Beim Post-Readout-Annealing, also dem Ausheizvorgang, der nach der Messung des Thermolumineszenz - Vorgangs geschieht, geht es darum, eventuelle Rest-Signale zu löschen. Bei diesen Restsignalen kann es sich z.B. um angeregte Zustände handeln, die durch die Bestrahlung entstanden sind, beim Heizvorgang während der Messung jedoch nicht abgeregelt wurden. Dies kann zwei Gründe haben: Nimmt man an, dass ein angeregter Zustand die in Gleichung 2.2 angegebene Lebensdauer $\tau = s^{-1} \cdot e^{\frac{E}{k_B T}}$ besitzt. Dann lässt sich die Wahrscheinlichkeit, dass sich pro Zeiteinheit ein Zustand abregt, darstellen als:

$$p(E, T) = \frac{1}{\tau} = s \cdot e^{-\frac{E}{k_B T}} . \quad (4.1)$$

Erst wenn $k_B \cdot T$ in der selben Größenordnung wie E ist, wobei E die Energie des angeregten Zustandes darstellt, wird die Abregungswahrscheinlichkeit maximal. Unterhalb sehr großer Temperaturen gibt es immer auch eine Wahrscheinlichkeit $\hat{p} = 1 - p$ dafür, dass sich der angeregte Zustand nicht abregt. Im Messbereich, also im Temperaturintervall zwischen Zimmertemperatur und der maximal erreichten Temperatur während des Messvorgangs ist die Wahrscheinlichkeit für eine Abregung der Zustände, die zu den Peaks Zwei bis Fünf gehören groß. Trotzdem bleibt eine Restwahrscheinlichkeit, dass sich Zustände, die zur Glühkurve beitragen, nicht abregen und

dann fälschlicherweise bei nachfolgenden Messungen Beiträge liefern. Dieser Effekt ist jedoch nicht bestimmend und somit nicht der Hauptgrund für die Notwendigkeit eines Post-Readout-Anneal-Vorgangs. Dieser liegt vielmehr darin, dass neben den angeregten Zuständen, aus denen die vier sichtbaren Intensitätsmaxima resultieren, weitere zu besetzende Haftstellen mit höheren Energieniveaus existieren. Die Abregungswahrscheinlichkeit dieser Zustände ist im betrachteten Temperaturintervall sehr gering, sodass die Energie, die der Messkristall in diesen Haftstellen speichert, während des Messvorgangs nicht frei wird. Diese Zustände werden also durch Bestrahlung besetzt und anschliessend nicht abgeregt. Wird der Kristall nun anschliessend ohne weitere thermische Behandlung wieder bestrahlt, so sind diese Zustände bereits besetzt, und können somit keine Energie mehr aufnehmen. Sinkt die Dichte der zur Verfügung stehenden energetisch höheren Haftstellen, so sinkt auch bei gleicher Dosis die Wahrscheinlichkeit, dass diese besetzt werden. Dadurch steigt automatisch die Besetzung der energetisch niedrigeren Haftzustände, sodass letztlich eine größere Dosis gemessen wird, da die energetisch niedrigeren Zustände zur Dosismessung beitragen. Dieser Effekt ist solange zu beobachten, bis alle energetisch höheren Haftzustände besetzt sind. Ist dies der Fall, ist die Intensität des Thermolumineszenz-Signals maximal, da nur noch energetisch niedrige Haftstellen besetzt werden können. Des Weiteren können Elektronen, die diese tiefen Haftstellen besetzen, durch die Energie der einfallenden Strahlung in weniger tiefe Niveaus angeregt werden, und damit zum Thermolumineszenzsignal beitragen. Somit hängt die integrierte Intensität des Thermolumineszenz-Signals, und damit die gemessene Dosis von der Dosishistorie des Messkristalls ab. Dies ist sowohl bei der Untersuchung der Reproduzierbarkeit als auch bei der Anwendung im Bereich des Strahlenschutzes nicht wünschenswert. Daher werden die Lithiumfluorid-Kristalle nach dem Messvorgang häufig bei einer hohen Temperatur über einen langen Zeitraum ausgeheizt, um die Abregungswahrscheinlichkeit der sogenannten „deep traps“, also der Haftstellen mit großen Energielücken, zu maximieren. Im Idealfall soll der Messkristall nach dem Ausheizvorgang wieder in derselben Struktur (bezüglich Haftstellen und Rekombinationszentren) vorliegen, wie vor der Bestrahlung und dem Messvorgang. Umso näher man diesem Idealfall kommt, umso besser sollte die Reproduzierbarkeit sein - wenn apparative Fehler während des Auslesevorgangs vernachlässigt werden können [7].

Abbildung 4.1 zeigt den Einfluss des Annealing-Vorgangs auf die Form der Glühkurve von TLD-100 Lithiumfluorid-Kristallen.

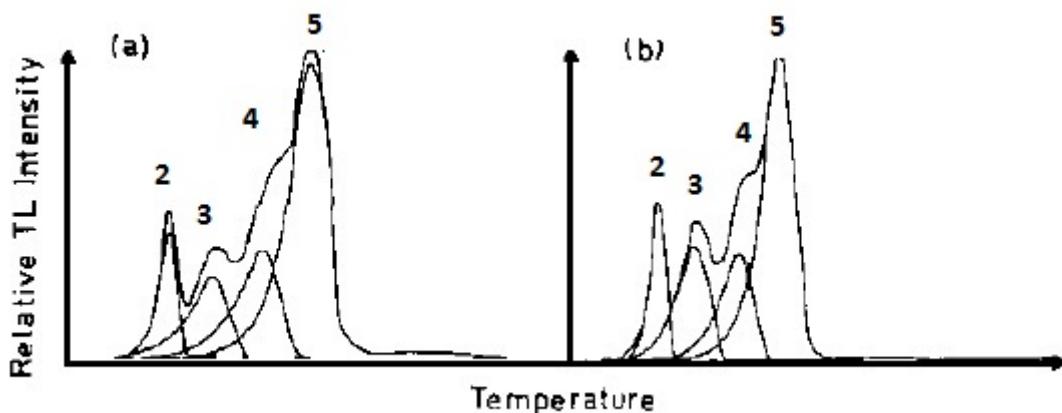


Abbildung 4.1: Glühkurve eines TLD-100 Kristalls nach Bestrahlung einer Dosis von ca. 0,1 Gy durch eine ^{60}Co -Quelle. a) Post-Readout-Anneal 400°C/1h, b) kein Anneal. Die Ordinatenachse zeigt die Intensität der Peaks relativ zu Peak 5, die Abszissenachse die Temperatur. Die Glühkurven wurden in vier einzelne Peaks zerlegt. Ohne Annealing nimmt die Intensität von Peak Drei signifikant zu [6].

Auf der Ordinatenachse ist dabei die relative Intensität des Signals zur Signalhöhe des fünften Peaks (der vierte Peak in Abb. 4.1) dargestellt, die Abszissenachse beschreibt die Temperatur. Es kann qualitativ festgehalten werden, dass die relative Intensität von Peak Drei ohne Annealing signifikant zunimmt.

Die bisherigen Überlegungen gelten für alle Materialien, die zur Thermolumineszenz-Dosimetrie verwendet werden können. Der genaue Annealvorgang, also die Dauer, sowie die Temperatur des Ausheizvorgangs, variiert allerdings je nach Material. Nach C. Furetta [7] besteht der ideale Ausheizvorgang bei Lithiumfluorid-Kristallen aus einer Temperatur von 400°C bei einer Haltezeit von einer Stunde sowie einer nachfolgenden Temperatur von 80°C bei einer Haltezeit von 20 Stunden. Im Rahmen der Messungen zu dieser Bachelorarbeit wurde der Vorgang leicht modifiziert. Der zur Verfügung gestellte Ofen der Firma Conrad Naber Industrieofenbau von 1969, innerhalb dessen die Kristalle auf einer Kupferplatte ausgeheizt werden, weist im Vergleich zur Größe der Kristalle sehr große Ausmaße auf, sodass die Temperatur innerhalb des Ofens, auf der die Steuerung der Zeitschaltuhr des Ofens beruht, nicht direkt der Temperatur der Kristalle entspricht. Es existiert vielmehr eine Verzögerung zwischen der Temperatur innerhalb des Ofens und der Temperatur des Kupferblocks, innerhalb dessen die Messkristalle gelagert sind. Um zu gewährleisten, dass die Kristalle tatsächlich mindestens eine volle Stunde bei 400°C gehalten werden, wurde die Haltezeit bei 400°C auf zwei Stunden erhöht. Dadurch kann auf der einen Seite sichergestellt werden, dass die benötigte Haltezeit von einer Stunde erreicht wird, auf der anderen Seite hat eine größere Haltezeit keine weiteren negativen Auswirkungen, wie durch Abbildung 4.2 klar wird. Dabei ist auf der Ordinatenachse das nach dem Annealvorgang vorhandene Restsignal dargestellt, auf der Abszissenachse die Dauer des Annealvorgangs. Es ist also zu erkennen, dass das Restsignal gegen das (bekannte) Untergrundsignal konvergiert, wenn eine gewisse kritische Zeit überschritten wird.

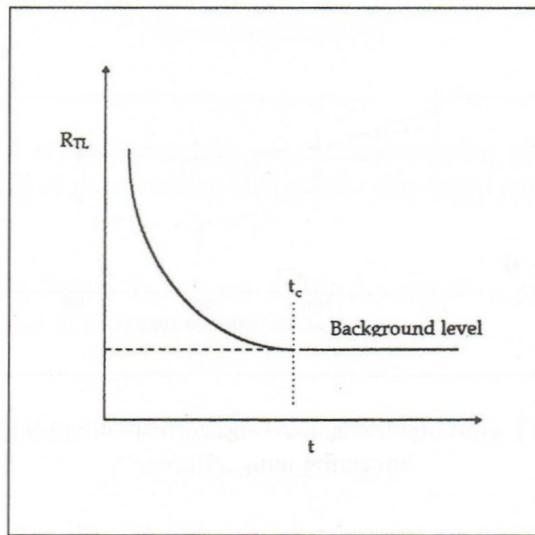


Abbildung 4.2: Zusammenhang zwischen verbleibendem Restsignal und Haltezeit beim Post-Readout-Annealvorgang. Die Ordinatenachse zeigt die Intensität des Restsignals, die Abszisse die Haltezeit des Annealvorgangs. Aber eine kritischen Haltezeit t_c lässt sich das Restsignal nicht weiter verringern [7].

Die Ofensteuerung erlaubt desweiteren lediglich die Einstellung eines Temperaturintervalls statt einer absoluten Haltetemperatur. Das Temperaturintervall wurde in Folge dieser Einschränkung als 395°C - 405°C gewählt.

Eine weitere Änderung ist dadurch begründet, dass der Ofen während des Ausheizvorgangs berücksichtigt werden muss, um Brandschutzbestimmungen einhalten zu können. Aus diesem Grund darf der Ofen über Nacht nicht betrieben werden, eine Haltezeit von 20 Stunden bei 80°C ist also in dieser Form nicht umsetzbar. Allerdings weist der Ofen eine sehr gute thermische Isolierung auf, die es erlaubt die Abkühlung von 400°C bis Zimmertemperatur über ein sehr langes Zeitintervall auszudehnen. Als Ersatz für die Haltezeit von 20 Stunden bei 80°C wird deshalb die Abkühlung bis Zimmertemperatur über 20 Stunden ausgedehnt, sodass sich der Kristall 20 Stunden lang in einem thermisch angeregten Zustand befindet. Da der Ofen während des Abkühlvorgangs keinen Kontakt zum Stromnetz erfordert, und es somit nicht zu einer Überhitzung kommen kann, ist dieses Ersatzverfahren im Rahmen des Brandschutzes anwendbar. Des Weiteren wird durch die langsame Abkühlung gewährleistet, dass der Kristall nach dem Erhitzen wieder dieselbe Struktur annimmt wie zuvor.

4.1.2 Pre-Readout-Annealing

Das Pre-Readout-Annealing oder auch Post-Irradiation-Annealing, also das Ausheizen direkt nach der Bestrahlung und damit noch vor dem eigentlichen Auslesevorgang wird nur bei Thermolumineszenzmaterialien angewandt, die Haftstellen aufweisen, die sich bereits bei niedrigen Temperaturen abregen. Diese Zustände weisen meist bei Zimmertemperatur schon eine erhebliche Abregungswahrscheinlichkeit auf, sodass es zu starken Schwankungen bei der Intensitätsmessung dieser Peaks kommen kann. Wird nun vor dem Messvorgang ein Anneal-Vorgang bei einer passenden Temperatur durchgeführt, so werden diese Zustände vollständig abgeregelt und im eigentlichen Messvorgang nicht mehr registriert. Auf diese Weise soll also die aus der zufälligen Abregung bei Raumtemperatur stammende Fehlerquelle beseitigt werden. Abbildung 4.3 zeigt die Glühkurve eines TLD-100 Kristalls, der eine Dosis von 0,1 Gy von einer ^{60}Co Quelle erfahren hat. In beiden Fällen wurde der Kristall vor der Bestrahlung eine Stunde bei 400°C und anschließend 20 Stunden bei 80°C ausgeheizt (vergleiche Kapitel „Post-Readout-Annealing“). Die mit (a) gekennzeichnete Glühkurve wurde ohne Pre-Readout-Annealing aufgenommen, die mit (b) gekennzeichnete Glühkurve wurde vor dem Readout 30 Minuten bei 100°C ausgeheizt.

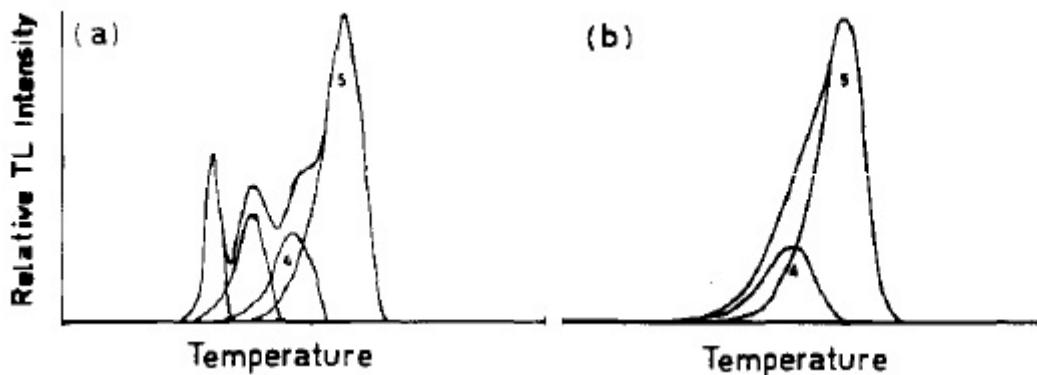


Abbildung 4.3: Glühkurve eines TLD-100 Kristalls nach Bestrahlung einer Dosis von ca. 0,1 Gy durch eine ^{60}Co -Quelle. a) ohne Pre-Readout-Anneal, b) Pre-Readout-Anneal: 100°C/30min. Die Ordinate zeigt die relative Intensität der Peaks bezüglich Peak Fünf. Es ist zu erkennen, dass ein Pre-Readout-Anneal-Vorgang eine Auslöschung der Peaks Zwei und Drei zur Folge hat [6].

Es ist deutlich zu erkennen, dass die Peaks zwei und drei durch das Pre-Readout-Annealing-Verfahren verschwinden. Des Weiteren ist zu erkennen, dass das Maximum von Peak vier eine Verschiebung hin zu höheren Temperaturen erfährt, wenn der Kristall vor dem Messvorgang ausgeheizt wird. Dies erschwert eine Trennung der Peaks vier und fünf und stellt damit eine Schwierigkeit beim Fitten der einzelnen Glowpeak-Funktionen dar. Eine Aufgabe dieser Bachelorarbeit muss es demnach sein, den Vorteil der Beseitigung der Peaks bei niedrigeren Temperaturen gegen den Nachteil der Verschiebung des vierten Peaks in den fünften Peak abzuwegen. Statt die Peaks zwei und drei durch Pre-Readout-Annealing zu beseitigen wird deshalb auch eine Methode ohne Pre-Readout-Annealing verwendet, bei der die Peaks zwei und drei bei der Berechnung des Flächeninhaltes vernachlässigt werden. Dies erfüllt ebenfalls den Zweck, Abweichungen durch zufällige Abregungen der Peaks bei den niedrigeren Temperaturen zu vermeiden, hat dabei allerdings den Vorteil, dass keine Peakverschiebungen auftreten. Diese beiden Verfahren sollen als Konkurrenzverfahren untersucht werden (siehe Kapitel „Untersuchung der Reproduzierbarkeit“).

Sowohl beim Pre-Readout-Annealing als auch im Fall des Post-Readout-Annealing ist es elementar wichtig die Heizvorgänge möglichst reproduzierbar zu gestalten. Die verwendeten Lithiumfluorid-Kristalle erreichen während der Ausheizvorgänge über einen langen Zeitraum Temperaturen von bis zu 400°C. Der Kristall ist immer bemüht den Zustand anzunehmen, der bei der jeweiligen Temperatur im thermodynamischen Gleichgewicht ist. Dabei können sich die Zustände bei Zimmertemperatur bzw. bei 400°C vor allem durch unterschiedlich stark ausgeprägte Ordnung unterscheiden. Ein Kristall, der aus verschiedenen Materialien (in diesem Fall Lithium und Fluor) besteht, kann bei genügend langsamem abkühlen eine innere Ordnung, d.h. eine regelmäßige Anordnung der unterschiedlichen Atome ausbilden. Bei großen Temperaturen sind die beiden Stoffe statistisch im Kristallgitter verteilt. Ähnlich verhält es sich mit den eingebrachten Störstellen, die als Haft- und Aktivatorzentren fungieren. Erhitzt man einen Kristall über eine gewisse Grenztemperatur, bei der sich die Ordnung innerhalb des Kristalls ändern kann, gibt es zwei Möglichkeiten diesen Prozess bei wiederholter Anwendung reproduzierbar zu gestalten. Die eine Möglichkeit besteht darin, den Kristall möglichst langsam abzukühlen, sodass der Kristall nach dem Abkühlen wieder denselben Zustand einnehmen kann, den er vor dem Erwärmen im thermodynamischen Gleichgewicht bei Zimmertemperatur eingenommen hat. Die Notwendigkeit den Kristall über einen möglichst langen Zeitraum abzukühlen, folgt aus der geringen Diffusionsgeschwindigkeit der einzelnen Atome im Kristall: der Kristall nimmt eine feste Struktur an, die Bewegung eines Atoms innerhalb dieses Gitters kann nur über Leerstellen, die jeder Kristall (als Gitterfehler) beinhaltet, geschehen.

Die andere Möglichkeit besteht darin, den Kristall nach Ablauf der Ausheizzeit sehr schnell abzukühlen, also abzuschrecken, um den Zustand, der sich bei 400°C im thermodynamischen Gleichgewicht befindet, zu konservieren. Experimente mit sehr genauen Aufbauten haben gezeigt, dass das Abschrecken der Kristalle hervorragende Ergebnisse liefert, wenn es reproduzierbar durchgeführt werden kann, wobei es nebenbei den Vorteil eines deutlich kleineren Durchführungszeitraums bietet.

Im Rahmen dieser Bachelorarbeit wurde jedoch die erste Möglichkeit verwendet, der Kristall wurde langsam abgekühlt. Dies erfüllt auf der einen Seite den positiven Nebeneffekt die im Kapitel zuvor erwähnte empfohlene Ausheizzeit von 20 Stunden bei 80°C zu ersetzen, und ist außerdem weniger anfällig auf Temperaturschwankungen innerhalb des Ofens. Dieser kann, wie zuvor erwähnt, nur innerhalb eines gewissen Temperaturfensters arbeiten. Dabei wird im Falle des Ausheizvorgangs bis 400°C ein Temperaturfenster von 395°C - 405°C verwendet. Innerhalb dieses Fensters kann die Temperatur schwanken. Auf den Ausheizvorgang selbst hat dies keine großen Auswirkungen, die Thermolumineszenzzentren entladen sich bereits bei Temperaturen, die etwas unterhalb von 400°C liegen. Würde man die Kristalle jedoch abschrecken, könnte ein Temperaturunterschied von 10°C empfindliche Änderungen in der Struktur zur Folge haben, sodass es im Rahmen des verwendeten Aufbaus die bessere Möglichkeit ist, den Kristall langsam abzukühlen.

4.2 Heizrate

Ein weiterer wichtiger Punkt bei der Erzeugung reproduzierbarer Glühkurven und damit reproduzierbarer Messergebnisse ist die während des Messvorgangs gewählte Heizrate. Dabei lässt sich der Einfluss der Heizrate in zwei Bereiche unterteilen: Es spielt auf der einen Seite eine große Rolle, dass die Heizrate möglichst linear ist (vergleiche Kapitel 2.4), auf der anderen Seite verändert eine höhere Heizrate die Form der Glühkurve. Im Rahmen dieser Bachelorarbeit wird vor allem die Linearität der Heizrate eine Rolle spielen, Veränderungen der Form der Glühkurve durch erhöhte Heizraten spielen eine untergeordnete Rolle, da die Wahl der Heizrate durch das Trägerheizverfahren auf einen relativen geringeren Bereich begrenzt ist. Große Heizraten (oberhalb von $100\text{ }^{\circ}\text{C/min}$) erfordern eine sehr große Leistung, da nicht nur der Messkristall, sondern auch der Träger erhitzt werden muss. Da dieser im Vergleich zum Kristall eine sehr große Ausdehnung hat, ist eine deutlich größere Leistung erforderlich, als dies zur reinen Erhitzung des Kristalls nötig wäre. Unterschiede in der Glühkurve durch unterschiedliche Heizraten werden erst bei großen Änderungen der Heizrate sichtbar.

Die Steuerung des verwendeten Messaufbaus erlaubt sowohl eine automatische Regelung der Heizleistung, die gewährleisten soll, dass die Heizrate konstant bleibt, als auch eine feste Einstellung der Heizleistung.

Die automatische Regelung der Heizleistung erfolgt über eine im Messprogramm durch LabView integrierte Funktion. Dabei wird jede Sekunde ein Temperaturmesswert aufgenommen, wobei das Programm den Anstieg aus dem aktuellen Messwert und dem zurückliegenden Messwert bestimmt und mit einem idealen Anstieg von $30\text{ }^{\circ}\text{C/min}$ vergleicht. Weichen die Messwerte vom Sollwert ab, wird die Heizleistung derart angepasst, dass möglichst schnell wieder die Sollwerte erreicht werden. Da nur jede Sekunde ein Messwert aufgenommen wird, führen Abweichungen vom Sollwert allerdings meist zu größeren Abweichungen von der im Idealfall linearen Heizkurve (Messung der Temperatur in Abhängigkeit von der Zeit), da die Anpassung der Heizleistung ebenfalls im Sekundentakt erfolgt und damit immer eine Sekunde hinter der aktuelle Heizrate zurückliegt. Trotz dieser Schwäche lassen sich mit dieser Methode in guter Näherung lineare Heizvorgänge realisieren. In Abbildung 4.4 ist die Aufzeichnung einer mit dieser Methode erzeugten Heizkurve (rot) dargestellt. Die Abweichungen von der ebenfalls eingezeichneten linearen Sollkurve (grün) sind deutlich zu erkennen.

Wählt man größere Heizleistungen, so sollten sich in einem Temperaturintervall zwischen ca. $75\text{ }^{\circ}\text{C}$ und $200\text{ }^{\circ}\text{C}$ (innerhalb dessen auch das für die Thermolumineszenzdosimetrie interessante Temperaturintervall liegt) ohne Steuerung konstante Heizraten realisieren lassen. Ob dies umsetzbar ist und einen Qualitätsgewinn in Hinsicht auf die Reproduzierbarkeit bedeutet, muss sich im Rahmen der Untersuchungen zu dieser Bachelorarbeit zeigen. Sollte sich die Erwartung geringerer Abweichungen von einer linearen Heizrate bewahrheiten, so könnte die Methode konstanter Heizleistungen in der Hinsicht auf reproduzierbare Messergebnisse die bessere Methode darstellen.

4.3 Einfluss der Dosisleistung

In den bisherigen Überlegungen wurde die Dosis als unabhängige Variable behandelt, die durch die physikalischen Umstände während der Bestrahlung gegeben ist. Ein Blick zurück in Kapitel 2.3.1 zeigt jedoch, dass sich die Dosis als Produkt aus Dosisleistung und Bestrahlungszeitraum ergibt. Die gleiche Dosis kann also in langen Zeiträumen mit kleiner Dosisleistung oder in kurzen Zeiträumen mit großer Dosisleistung erreicht werden. Im Idealfall sollte das Ergebnis der Thermolumineszenzdosimetrie von der Dosisleistung unabhängig sein, da diese im Falle der Anwendung des Dosimeters im Rahmen des Strahlenschutzes im Allgemeinen als unbekannt angesehen werden

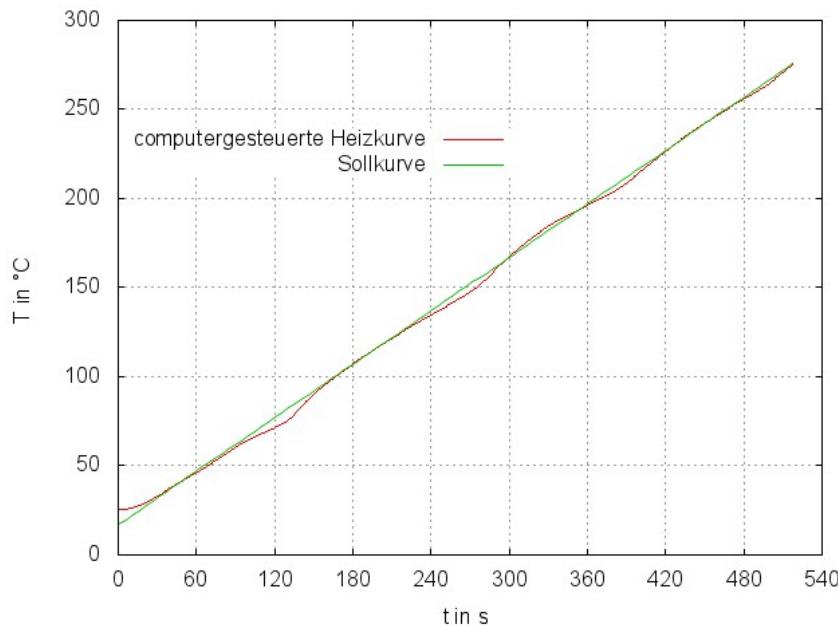


Abbildung 4.4: rot: mit computergesteuerter Heizleistung aufgenommene Heizkurve, grün: Sollkurve ($30^{\circ}\text{C}/\text{min}$).

muss. Nach Quelle [8] gehen die meisten Veröffentlichungen zum Thema Thermolumineszenzdosimetrie davon aus, dass die durch Thermolumineszenz eines LiF-Kristalls ermittelte Dosis in einem Dosisleistungsbereich zwischen $5 \frac{\text{Gy}}{\text{s}}$ und $1,7 \cdot 10^8 \frac{\text{Gy}}{\text{s}}$ unabhängig von der Dosisleistung ist. Bei kleineren Dosisleistungen (in der Größenordnung von $10^{-3} \frac{\text{Gy}}{\text{s}}$ bis $1 \frac{\text{Gy}}{\text{s}}$) gibt es jedoch experimentelle Evidenz für eine vorhandene Dosisleistungsabhängigkeit (Wintersgill & Townsend 1978 [8]). Generell würde man für Peaks, die bei Glühtemperaturen in der Nähe der Bestrahlungstemperatur liegen, einen Anstieg der Intensität mit Anstieg der Dosisleistung erwarten, da die Emission des Thermolumineszenzsignals und die Anregung der Thermolumineszenzzentren in diesem Fall einen Konkurrenzprozess darstellen würde. Wird also dieselbe Dosis und damit die selbe Energiemenge über einen kürzeren Zeitraum an den Kristall abgegeben, entsteht dieselbe Menge an angeregten Zuständen bei einem kürzeren Abregungszeitraum, sodass die Intensität bei der Messung des Thermolumineszenzsignals steigt. Die Peaks bei Temperaturen weit überhalb der Zimmertemperatur zeigen jedoch umgekehrtes Verhalten. Eine mögliche Begründung liefert ein simuliertes Modell von R. Chen und P. L. Leung, die in Übereinstimmung mit den experimentellen Beobachtungen von Valladas und Ferreira, denen 1980 der Nachweis einer Dosisleistungsabhängigkeit unterschiedlicher spektraler Komponenten eines Thermolumineszenzpeaks gelang [8], die Annahme machen, dass zu einer Haftstelle mehrere unterschiedliche Rekombinationszentren gehören. Diese Rekombinationszentren geben bei ihrer Abregung dann Licht unterschiedlicher Wellenlängen ab. Die Simulation eines solchen Systems zeigt, dass die Emission des Lichts der unterschiedlichen Wellenlängen von der Dosisleistung abhängt. Die Abhängigkeit der Intensität des durch die beiden unterschiedlichen Zentren emittierten Lichtes von der Dosisleistung ist in Abb. 4.5 dargestellt.

Geht nun eines der beiden Rekombinationszentren während des Messvorgangs strahlungslos oder in einem Spektralbereich, der vom verwendeten Photomultiplier nicht registriert wird, in den Grundzustand über, so wird nur die Dosisleistungsabhängigkeit des anderen Spektralbereichs erfasst. Dadurch kann eine dosisleistungsabhängige Intensität eines TL-Peaks verzeichnet werden. Die Simulation von Chen und Leung erklärt den zu beobachtenden Effekt qualitativ, dabei ist allerdings zu beachten, dass der reale Fall eines LiF-Kristalls eine deutlich kompliziertere Struktur von Haftstellen und Rekombinationszentren aufweist, sodass anhand des simulierten Modells

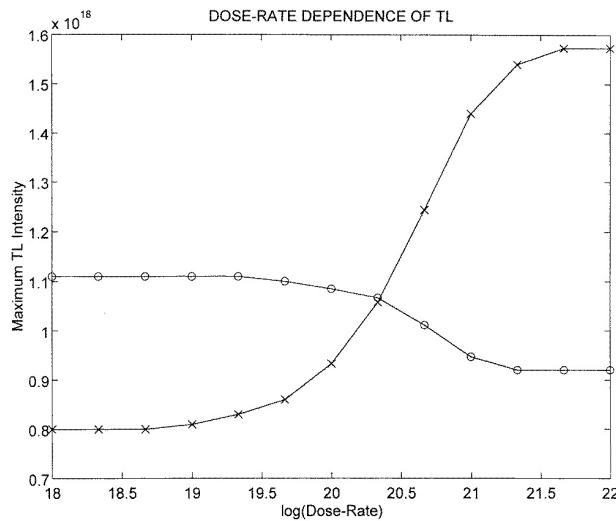


Abbildung 4.5: Simulation: Abhängigkeit der Intensität der Thermolumineszenzemission zweier Rekombinationszentren von der Dosisleistung bei einer konstanten Dosis [9].

keine quantitativen Aussagen getroffen werden können, zumal der Messaufbau keine Möglichkeit bietet, einen Thermolumineszenzpeak auf seine spektrale Zusammensetzung zu untersuchen. Im Rahmen dieser Bachelorarbeit soll allerdings in Hinsicht auf die Reproduzierbarkeit von Dosismessungen untersucht werden, ob die Messergebnisse eines Kristalls bei gleicher Dosis aber unterschiedlichen Dosisleistungen miteinander vergleichbar sind, oder ob es innerhalb der durch den verwendeten Bestrahlungsapparates vorgegebenen Dosisleistungsbandbreite zu den eben geschilderten Dosisleistungsabhängigkeiten kommt.

5 Untersuchung der Reproduzierbarkeit

Um die Reproduzierbarkeit des zuvor beschriebenen Messaufbaus unter Verwendung von TLD-100 LiF:Mg,Ti Kristallen der Firma Harshaw zu untersuchen, wurden verschiedene Messreihen durchgeführt. Dazu wurden sieben Kristalle verwendet, die allesamt vor der ersten Verwendung zwei Stunden bei 400°C ausgeheizt und anschliessend über 20 Stunden auf Zimmertemperatur abgekühlt wurden, um alle Messreihen bei gleichen Voraussetzungen zu beginnen. Eine Messreihe besteht aus fünf aufeinanderfolgenden Messungen bei möglichst identischer Dosis. Folgende Messreihen wurden aufgenommen:

Kristall #	Anneal	Pre-Readout-Anneal	Heizleistung
01	nein	nein	gesteuert
17	ja	nein	gesteuert
20	ja	ja	gesteuert
P1	nein	nein	26,2 W
P2	ja	nein	26,2 W
18	nein	nein	53,7 W
21	ja	nein	53,7 W

Tabelle 5.1: Im Rahmen der Untersuchung der Reproduzierbarkeit eines Thermolumineszenzaufbaus durchgeführte Messreihen

Bei allen Messreihen, bei denen in der Spalte „Anneal“ ein „ja“ vermerkt ist, wurde der verwendete Kristall nach jeder Messung zwei Stunden bei ca. 400°C ausgeheizt und anschliessend innerhalb von ca. 20 Stunden bis zur Zimmertemperatur abgekühlt, bevor sie erneut bestrahlt wurden. Der Kristall mit der Nummer 20 wurde außerdem nach der Bestrahlung und vor der Messung 30 Minuten ausgeheizt mit einem eingestellten Temperaturintervall von 105°-110°C und anschliessend langsam bis 55°C abgekühlt und dann ausgelesen. Der Eintrag „gesteuert“ in der Spalte „Heizleistung“ bedeutet, dass in diesem Fall die erwähnte Steuerung der Heizleistung verwendet wurde, die davor sorgt, dass die Heizrate möglichst genau bei 30°C/min bleibt. In den beiden anderen Fällen wurden konstante Heizleistungen verwendet. Für die Auswertung aller Messreihen wird das Programm GlowFit verwendet, um die Glühkurve in vier Peaks zu trennen und den Flächeninhalt unterhalb dieser Peaks zu bestimmen. Dabei wird die Summe des Flächeninhaltes unter allen Peaks, also der Flächeninhalt unter der Glühkurve ebenso berechnet, wie die Summe des Flächeninhaltes unterhalb der Peaks vier und fünf sowie der Flächeninhalt des Peaks fünf um für jede Methode zu prüfen, ob es sinnvoller ist, den gesamten Flächeninhalt zur Auswertung zu nutzen oder nur denjenigen der thermisch stabilen Peaks vier und fünf.

Um gezielt die Reproduzierbarkeit zu untersuchen, wird wie folgt verfahren: die erwähnten Flächeninhalte werden für alle Methoden bestimmt und (um Einflüsse geringer Dosisunterschiede zu vermeiden) durch die Dosis, der der Kristall ausgesetzt war, dividiert. Die auf diese Weise erhaltenen Werte werden für alle fünf Messungen einer Messreihe bestimmt, ein Mittelwert und eine Standardabweichung wird bestimmt. Die prozentuelle Standardabweichung stellt dann ein Maß für die Reproduzierbarkeit dar: je kleiner die prozentuelle Standardabweichung desto kleiner der statistische Fehler und desto größer ist die Reproduzierbarkeit.

Alle Kristalle wurden mit einer Dosis von ca. 14 mSv bestrahlt. Dies erscheint insofern als sinnvoll, da Dosimeter vom Typ TLD100 hauptsächlich zu medizinischen Zwecken und zum Strahlenschutz verwendet werden, wobei eine Dosis von 14 mSv in einer Größenordnung liegt, die innerhalb dieses Einsatzgebietes auftreten kann.

Die Messreihe, in deren Rahmen der Kristall mit der Nummer 01 verwendet wurde, repräsentiert das Messverfahren, das im Rahmen der Diplomarbeit von Stefan Korsten [10], sowie der Bachelorarbeit von Michèle Neumann [13] und im Fortgeschrittenen-Praktikum der Universität Münster verwendet wird und die ermittelten Werte für die prozentuelle Standardabweichung dieses Verfahrens sollen als Vergleichswerte dafür dienen, ob die im Rahmen dieser Bachelorarbeit eingeführten Veränderungen am Messvorgang zu einer Verbesserung in der Reproduzierbarkeit der Messergebnisse geführt haben.

5.1 Kristall 01: Bisheriges Messverfahren

Der Kristall 01 wurde 17 Stunden auf Position C bestrahlt, die resultierende Dosis liegt im Bereich von 14,13 mSv, variiert jedoch in der zweiten Nachkommastelle je nach Datum der Messung aufgrund der nachlassenden Aktivität der verwendeten Quelle. Dieser Effekt kann jedoch außer Acht gelassen werden, da die integrierte Intensität, die zur Auswertung verwendet wird, mit der erfahrenen Dosis gewichtet wird. Abbildung 5.1 zeigt die aufgenommenen Glühkurven nach der ersten Messung am 29.04.2011 und nach der zweiten Messung am 03.05.2011. Dabei fällt auf, dass die Intensität der Glühkurve bei der Messung am 03.05.2011 deutlich größer ist, als bei der Messung am 29.04.2011. Speziell im Bereich des Hauptpeaks im Temperaturintervall zwischen 420 K und 460 K ist ein deutlicher Intensitätsanstieg zu erkennen.

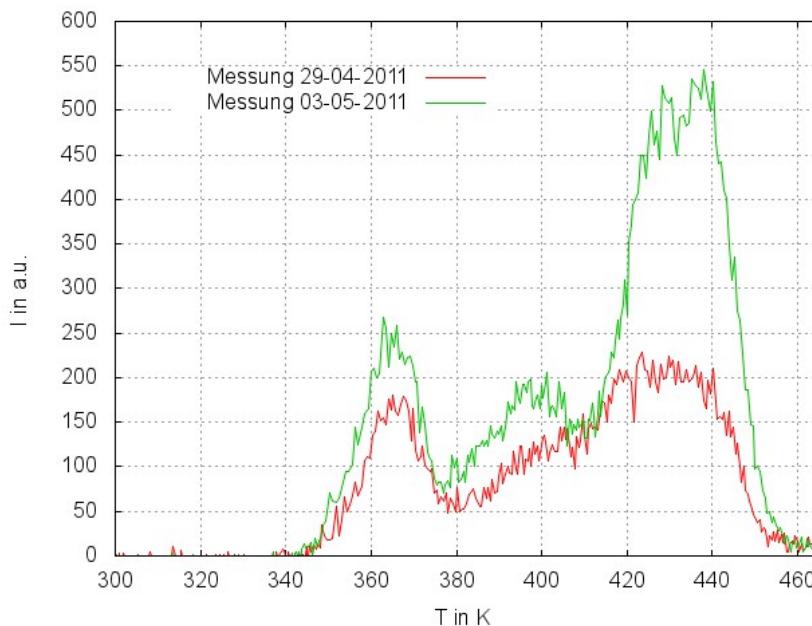


Abbildung 5.1: Untergrundbereinigte Glühkurven Kristall 01: rot: Messung vom 29.04.2011 - Dosis: 14,15 mSv // grün: Messung vom 03.05.2011 - Dosis: 14,13 mSv

Die maximale Intensität liegt bei der Messung am 03.05.2011 bei fast 550 Counts, während die Intensität bei der Messung am 29.04.2011 einen maximalen Wert von 230 Counts nicht überschreitet. Vor der Bestrahlung am 28.04.2011 wurde der Kristall ausgeheizt, d.h. im Idealfall wurden sämtliche Haftstellen geleert. Nach der Messung am 29.04.2011 wurde der Kristall jedoch nicht erneut ausheizt, sondern am 02.05.2011 wieder bestrahlt. Da die TLD100 Kristalle jedoch Haftstellen besitzen, deren Abregungswahrscheinlichkeit erst oberhalb der während des Messvorgangs erreichten Maximaltemperatur von 275°C genügend groß wird (sog. „deep traps“), so konnten diese während der Messung am 29.04.2011 nicht geleert werden und blieben somit besetzt. Bei der

Bestrahlung am 02.05.2011 konnte die von der radioaktiven Strahlung an den Kristall abgegebene Energie dann nicht mehr dazu genutzt werden, diese Haftstellen zu besetzen, stattdessen werden einige der Elektronen, die die tieferen Haftstellen besetzen, durch die Energie der einfallenden radioaktiven Strahlung in weniger tiefen Haftstellen angeregt, sodass insgesamt die Besetzung der zur Dosimetrie verwendete Haftstellen und damit die Intensität des Thermolumineszenzsignals steigt. Erfährt die Besetzung der tiefen Haftstellen eine Sättigung, so sollte die Intensität des Thermolumineszenzsignals nicht weiter zunehmen. Abbildung 5.2 zeigt die weiteren drei im Rahmen der Messreihe aufgenommenen Glühkurven.

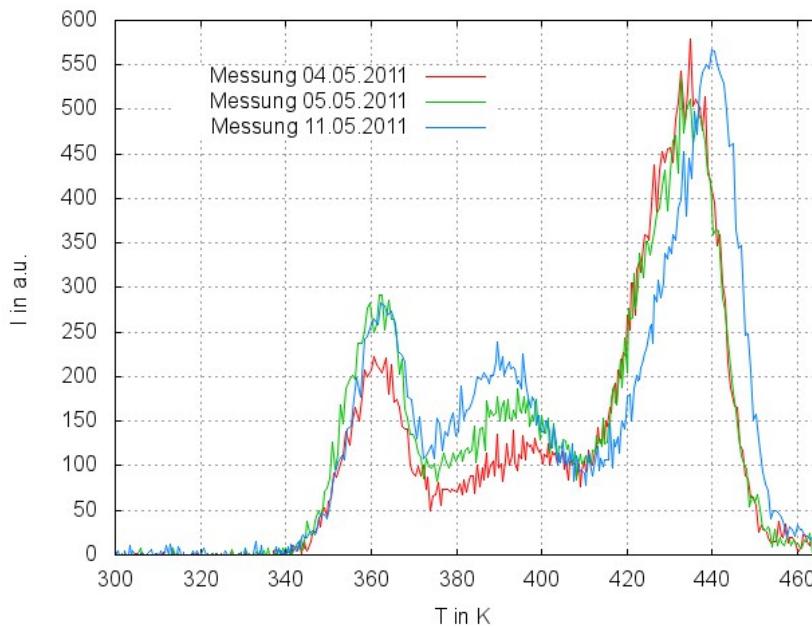


Abbildung 5.2: Untergrundbereinigte Glühkurven Kristall 01: rot: Messung vom 04.05.2011 - Dosis: 14,12 mSv // grün: Messung vom 05.05.2011 - Dosis: 14,13 mSv // blau: Messung vom 11.05.2011 - 14,09 mSv

Es ist zu erkennen, dass der Hauptpeak im Temperaturintervall von 410 K bis 460 K keine gravierenden Abweichungen in der Intensität aufweist. Die Abweichungen der Intensitäten der Peaks bei niedrigeren Temperaturen lassen sich durch thermische Abregung erklären: diese Peaks sind bei Zimmertemperatur nicht stabil, sodass es bei diesen Peaks zu unterschiedlichen Intensitäten kommen kann. Die leichte Verschiebung der Temperatur des Maximums des Hauptpeaks bei der Messung am 11.05.2011 resultiert vermutlich aus einer Unregelmäßigkeit bei der Messung der Temperatur und einer daraus resultierenden Abweichung der Heizrate von der linearen Heizrate mit 30K/min.

Um den Flächeninhalt unterhalb der Glühkurven zu bestimmen, zerlegt das Programm GlowFit die Glühkurven in vier unabhängige Peaks. Abbildung 5.3 zeigt dies am Beispiel der Messung vom 11.05.2011.

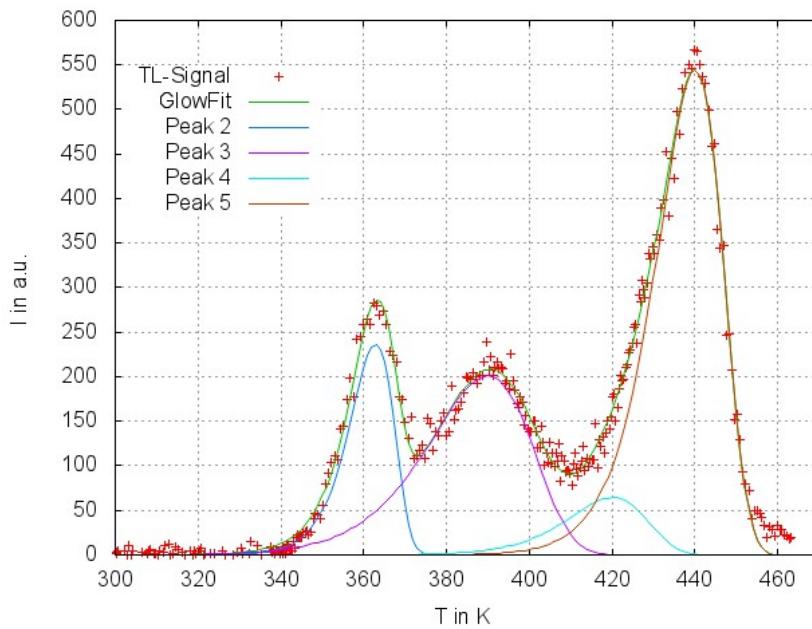


Abbildung 5.3: CGCD: Messung vom 11.05.2011 - gemessene Intensität, Aufteilung in vier Peaks und der daraus resultierende gesamte Fit

Tabelle 5.2 gibt die auf diese Weise ermittelten integrierten Intensitäten für die Summe aller Peaks, die Summe aus den Peaks Vier und Fünf, sowie lediglich Peak Fünf, gewichtet mit der jeweiligen Dosis an.

Messung vom	Counts/mSv Gesamtfit	Counts/mSv Peaks 4 & 5	Counts/mSv Peak 5
29.04.2011	2052	1624	1418
03.05.2011	3567	2300	1988
04.05.2011	2815	1822	1693
05.05.2011	3157	1793	1713
11.05.2011	3363	1911	1674
Mittelwert	2991	1890	1697
Standardabweichung in %	594	252	202
	19,86	13,31	11,92

Tabelle 5.2: Messreihe Kristall 01, Pos.C: Counts/mSv für den gesamten Fit, die Peaks 4 und 5, sowie den Peak 5

Die ermittelten Werte für die prozentuelle Standardabweichung von 19,86% für die integrierte Intensität der gesamten Glühkurve, 13,31% für die integrierte Intensität der Peak Vier und Fünf, sowie 11,92% für die integrierte Intensität des Peaks Fünf sollen im Folgenden als Vergleichswerte dienen. Dabei fällt bereits jetzt auf, dass es sinnvoll ist, die Zerlegung der Glühkurve in einzelne Peaks zu nutzen, da die prozentuelle Standardabweichung, wenn nur die Peaks Vier und Fünf, oder nur Peak Fünf genutzt werden, deutlich geringer ist, als wenn die thermisch instabilen Peaks Zwei und Drei bei der Bestimmung des Flächeninhaltes verwendet werden. Auffällig ist außerdem, dass die Reproduzierbarkeit scheinbar mit der Anzahl der Nutzungen steigt, weisen doch die drei zuletzt durchgeführten Messungen deutlich dichter beinander liegende integrierte Intensitäten auf. Hier tritt der Effekt der Sättigung der tiefen Haftstellen auf.

Um zu untersuchen, wie sich dieser Effekt weiterführend auf die Reproduzierbarkeit auswirkt und um gleichzeitig überprüfen zu können, inwiefern die Dosisleistung bei der Ermittlung der Dosis

aus dem integrierten Flächeninhalt unterhalb der Glühkurve eine Rolle spielt, wurde der Kristall 01 für eine zweite Messreihe verwendet. Dabei wurde der Kristall statt wie zuvor auf Position C nun auf Position A bestrahlt. Der Bestrahlungszeitraum wurde so gewählt, dass eine Dosis von 14,0 mSv erreicht wurde. Abbildung 5.4 zeigt die Glühkurve des Kristalls 01 für die Bestrahlung mit einer ähnlichen Dosis auf den Positionen A und C.

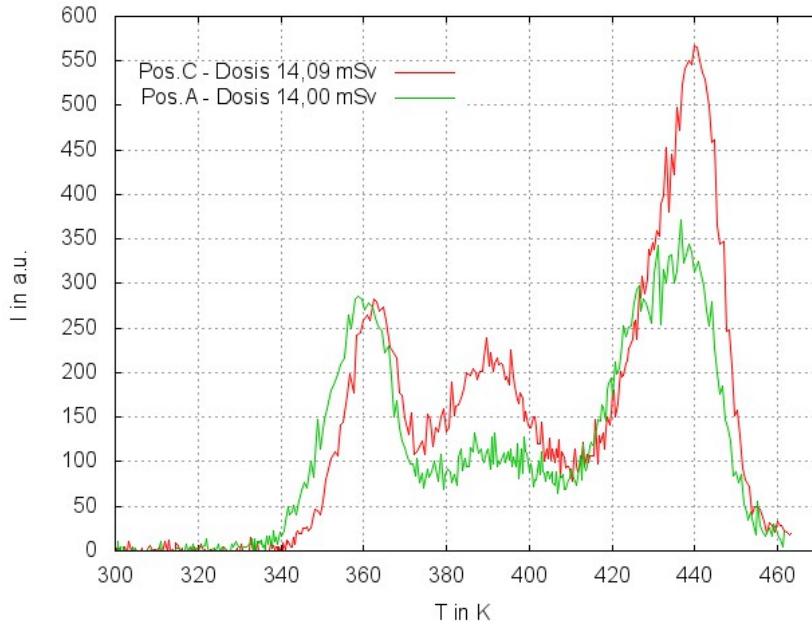


Abbildung 5.4: Kristall 01: Abhängigkeit der Glühkurve von der Dosisleistung

Es ist klar zu erkennen, dass lediglich Peak Zwei in beiden Fällen eine ähnliche Intensität aufweist, während sich die anderen Peaks deutlich in ihren Intensitäten unterscheiden. Diese Beobachtung deckt sich mit den in Kapitel 4.4 erläuterten Erwartungen an den Einfluss der Dosisleistung. Tabelle 5.3 zeigt wiederum die mit GlowFit ermittelten integrierten Intensitäten gewichtet mit der erfahrenen Dosis für die gesamte Glühkurve, die Peaks Vier und Fünf und den Peak Fünf, sowie die daraus bestimmten Mittelwerte und ihre Standardabweichung. Aufgrund eines Defektes am Messaufbau¹ konnten während dieser Messreihe lediglich vier Messwerte und nicht wie zuvor fünf Messwerte aufgenommen werden.

Messung vom	Counts/mSv Gesamtfit	Counts/mSv Peaks 4 & 5	Counts/mSv Peak 5
25.05.2011 (1)	2718	1451	1313
25.05.2011 (2)	2478	1514	1331
26.05.2011	2827	1429	1269
27.05.2011	2747	1378	1246
Mittelwert	2692	1443	1290
Standardabweichung	150	56	39
in %	5,58	3,91	3,06

Tabelle 5.3: Messreihe Kristall 01, Pos.A: Counts/mSv für den gesamten Fit, die Peaks 4 und 5, sowie den Peak 5

Bei näherer Betrachtung der Ergebnisse fallen drei Dinge auf:

- 1) Es bestätigt sich, dass die Auswertung der integrierten Intensitäten der Peaks Vier und Fünf

¹ siehe Kapitel: Probleme mit dem Aufbau

oder nur des Peaks Fünf gegenüber der Auswertung der integrierten Intensität der gesamten Glühkurve zu bevorzugen ist.

- 2) Es ist eine Abhängigkeit der integrierten Intensitäten von der Dosisleistung zu erkennen.
- 3) Es scheint sich zu bestätigen, dass die tiefen Haftstellen für die anfängliche Ungenauigkeit bei der Thermolumineszenzdosimetrie ohne Annealing verantwortlich sind, da die prozentuelle Standardabweichung im Rahmen dieser zweiten Messreihe deutlich niedrigere Werte aufweist.

Nachfolgend sollen nun die vorgeschlagenen Änderungen am Messvorgang, also die Einführung eines Post-Readout-Annealings, die Einführung eines Pre-Readout-Annealings und der Übergang zur Nutzung einer festen Heizleistung bei der Erhitzung des Kristalls während der Messung im Hinblick auf ihren Einfluss auf die prozentuelle Standardabweichung einer Messreihe untersucht werden.

5.2 Kristalle 18 & P1: konstante Heizleistung

Im folgenden Kapitel wird untersucht, ob sich die prozentuelle Standardabweichung einer Messreihe dadurch verbessern lässt, dass während des Heizvorgangs statt der computergesteuerten Heizrate eine feste Heizleistung verwendet wird. Dazu wurden zwei verschiedene feste Spannungen an die Heizpatrone angelegt. Im Falle des Kristalls 18 wurde 100% der maximal möglichen Spannung an die Heizpatrone angelegt. Dies entspricht 32,3 V bei einer Stromstärke von 1,7 A und damit einer Heizleistung von 54,9 W. Bei der Messung des Kristalls P1 wurde 70% der maximalen Spannung angelegt, dies entspricht einer Spannung von 22,6 V. Daraus resultiert eine Stromstärke von 1,1 A und damit eine Heizleistung von 26,2 W. Zunächst sollen die aus den eingestellten Heizleistungen resultierenden Heizkurven (also der Temperaturverlauf mit der Zeit) analysiert werden. Anschliessend wird der Einfluss der höheren Heizleistungen auf das Untergrundsignal diskutiert um abschliessend die resultierenden Glühkurven zu analysieren.

5.2.1 Heizrate

Kristall P1 - Heizleistung 26,2 W:

Um die Heizrate bei einer konstanten Heizleistung zu ermitteln, wird für jede Messung der Messreihe die gemessene Temperatur gegen die Zeit aufgetragen. Dann wird innerhalb des Intervalls, in dem die Temperatur linear mit der Zeit ansteigt ein Fit durchgeführt, dessen Steigung die Änderung der Temperatur pro Sekunde liefert. Anschliessend wird ein Mittelwert aus den fünf ermittelten Steigungen gebildet. Im Falle der Heizleistung von 26,2 W ergibt sich auf diese Weise eine Heizrate von ca. 47 K/min. Abbildung 5.5 zeigt die gemessene Aufheizkurve bei der Messung des Kristalls P1 am 29.06.2011, sowie eine Gerade mit der ermittelten Steigung von 47 K/min.

Dabei ist zu erkennen, dass die tatsächliche Aufheizkurve innerhalb eines Temperaturintervalls von ca. 375 K bis 525 K gut mit der bestimmten Heizrate von 47 K/min übereinstimmt. Außerhalb dieses Temperaturintervalls kommt es jedoch zu Abweichungen vom linearen Temperaturverlauf. Da eine konstante Heizrate, also eine lineare Temperaturkurve, eine Voraussetzung für die Grundgleichung der Thermolumineszenz (Formel 2.19) darstellt, könnte es bei der Bestimmung der Dosis zu Ungenauigkeiten kommen, wenn Peaks verwendet werden, die außerhalb des genannten Temperaturintervalls liegen.

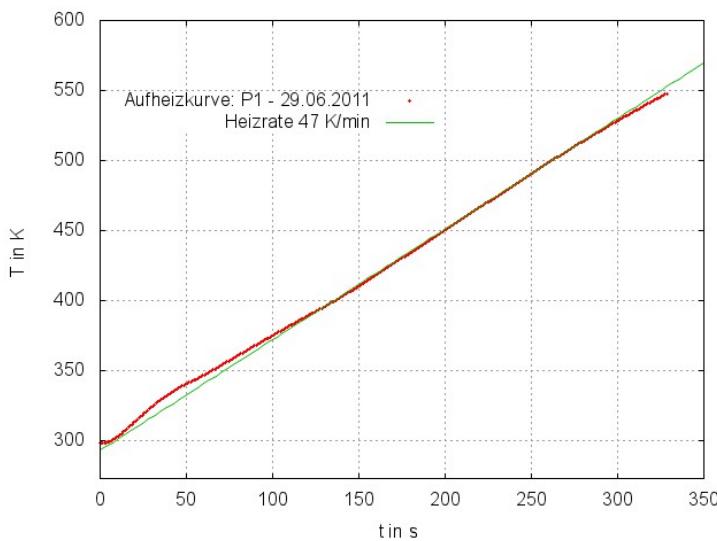


Abbildung 5.5: Vergleich gemessene Aufheizkurve (rot) mit ermittelter Steigung von 47 K/min (grün)

Kristall 18 - Heizleistung 54,9 W:

Die Bestimmung der mittleren Heizrate bei einer Heizleistung von 54,9 W wurde analog zu denjenigen bei einer Heizleistung von 26,2 W durchgeführt. Dabei ergibt sich eine Heizrate von 105 K/min. Abbildung 5.6 zeigt einen Vergleich der Aufheizkurve des Kristalls 18 vom 29.06.2011 mit einem linearen Heizvorgang mit einer Heizrate von 105 K/min.

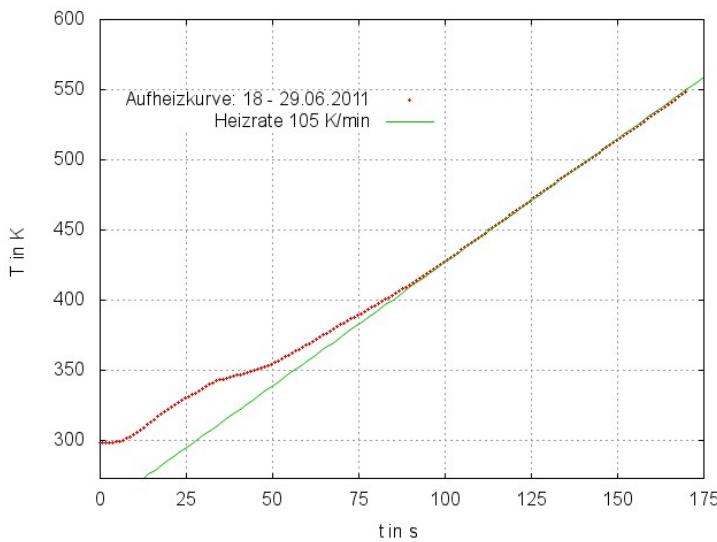


Abbildung 5.6: Vergleich gemessene Aufheizkurve (rot) mit ermittelter Steigung von 105 K/min (grün)

Dabei ist zu erkennen, dass bei einer solch großen Heizrate selbst oberhalb von 400 K Abweichungen zwischen der im Optimalfall konstanten Heizrate und der gemessenen Aufheizkurve bestehen, sodass Gleichung 2.19 lediglich im Temperaturintervall von 410 K bis 550 K erfüllt ist.

5.2.2 Abhangigkeit des Untergrundes von der Heizrate

Bei der Messung des Thermolumineszenzsignals eines Dosimeter-Kristalls wird auch ein Untergrundsignal gemessen. Dieses besteht aus zwei Teilsignalen: ein Teil des Untergrundes resultiert aus der Dunkelzahlrate des Photomultipliers und kann als konstant angenommen werden, ein weiterer Teil resultiert aus der Warmestrahlung, die Probe und Probenkopf bei der Erhitzung wahrend des Messvorgangs emittieren. Dieser Teil des Untergrundsignals entspricht einem exponentiellen Anstieg. Damit ergibt sich fur den gesamten Untergrund eine Funktion der Form $U(T) = a + b \cdot \exp\left(\frac{T}{c}\right)$. Da der aus Warmestrahlung resultierende Untergrund lediglich von der Temperatur des Strahlers abhangen sollte, aber nicht von der verwendeten Heizrate, so sollte das Untergrundsignal fur die drei im Rahmen dieser Bachelorarbeit verwendeten Heizraten innerhalb einer gewissen Messunsicherheit ubereinstimmen.

Abbildung 5.7 zeigt die gemessenen Untergrundsignale bei Heizraten von 30 K/min, 47 K/min und 105 K/min.

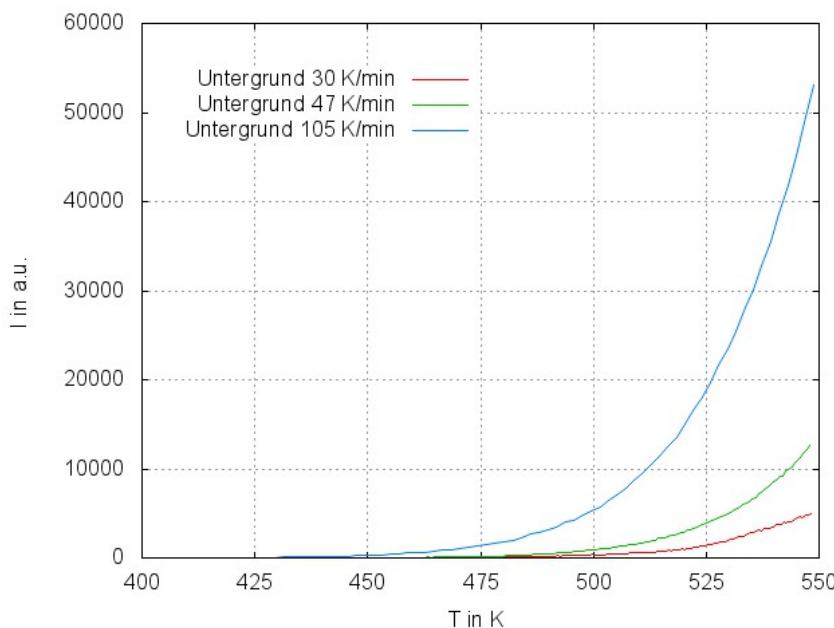


Abbildung 5.7: Untergrundsignal fur die Heizraten 30 K/min (rot), 47 K/min (grün) und 105 K/min (blau)

Es ist zu erkennen, dass sich die Untergrundsignale fur die drei verwendeten Heizraten stark unterscheiden. Je groer die Heizrate, desto geringer sind die Temperaturen, bei denen sich der aus der Warmestrahlung stammende Teil des Untergrundes von der Dunkelzahlrate abhebt und desto groer ist die Intensitat des Untergrundes bei Temperaturen oberhalb von 425 K. Diese Beobachtung steht im Widerspruch zur theoretischen Erwartung, dass die Intensitat der Warmestrahlung lediglich von der Temperatur abhangt. Die Tatsache, dass die Intensitat nicht nur groer ist, sondern der Anstieg schon bei niedrigeren Temperaturen beginnt, deutet jedoch darauf hin, dass die Temperaturmessung fehlerhaft ist. Vermutlich ist der Temperaturkontakt zwischen dem Temperaturfuhler und dem Probenkopf nicht gut genug, um Temperaturanderungen von mehr als 30 K/min verzogerungsfrei zu registrieren. Dies wurde dazu fuhren, dass die zugeordnete Temperatur niedriger ist als die tatsachliche Temperatur des Probenkopfes, sodass es bei hohen Heizraten zu einer systematischen Verschiebung der Intensitaten hin zu niedrigeren Temperaturen kommt. Diese Vermutung erklart also sowohl, wieso der Anstieg der Intensitat bei niedrigeren Temperaturen beginnt, als auch, wieso die Intensitat bei der Maximaltemperatur im

Falle größerer Heizraten deutlich größer ist: der Probenkopf hat in diesem Fall bereits eine deutlich höhere Temperatur erreicht, als es der Temperaturfühler registriert. Während der Durchführung der Messreihe mit dem Kristall 18 konnte die Beobachtung gemacht werden, dass der Temperaturfühler nach dem Ende der Messung (bei 275°C) steigende Temperaturen bis zu einem Wert oberhalb von 315°C anzeigte. Um zu überprüfen, ob es sich um eine systematische Verschiebung der Temperaturen handelt, wurde der Untergrund für die Messung mit einer Heizrate von 105 K/min systematisch um 30 K nach rechts verschoben und anschliessend mit der Untergrundkurve für eine Heizrate von 47 K/min verglichen. Abbildung 5.8 zeigt das Ergebnis.

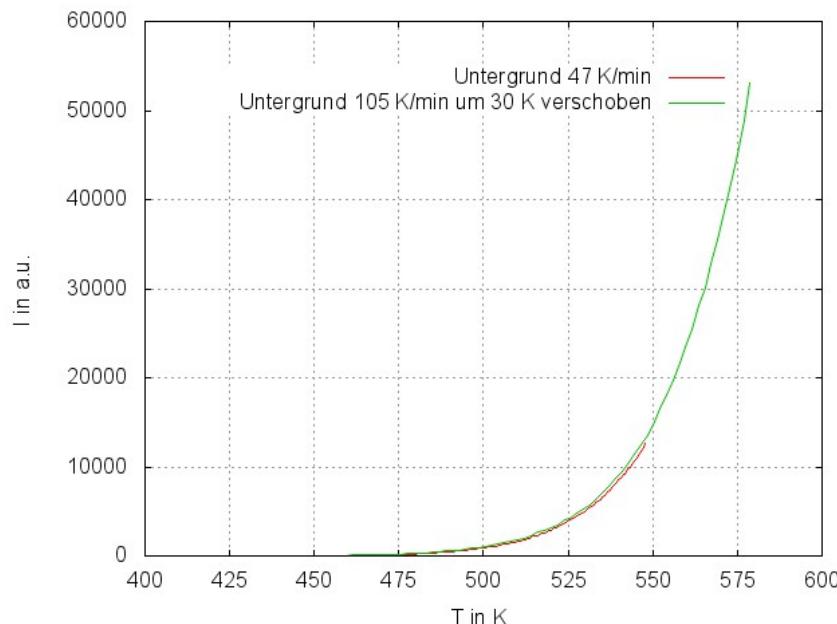


Abbildung 5.8: Vergleich der um 30 K verschobenen Untergrundkurve der 105 K/min Messung mit der unverschobenen Kurve der 47 K/min Messung

Die verschobene Untergrundkurve (grün) zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit der unverschobenen Untergrundkurve (rot) der Messung mit einer niedrigeren Heizrate, sodass nachfolgend davon ausgegangen werden kann, dass die Nutzung höherer Heizraten zu einer Verschiebung der Glühkurven hin zu niedrigeren Temperaturen führt. Allerdings kann nicht ausgeschlossen werden, dass der Temperaturkontakt und damit die Verschiebung der Glühkurven temperaturabhängig ist, d.h. es kann sein, dass die Verschiebung bei niedrigeren Temperaturen geringer ausfällt. Sollte dies der Fall sein, so würden die Thermolumineszenzpeaks bei höheren Heizraten weniger stark nach links verschoben als die Untergrundkurve, sodass es zu Überschneidungen der Untergrundkurve mit dem Thermolumineszenzsignals kommen kann. Die Genauigkeit der Thermolumineszenzmessung würde dadurch erheblich beeinträchtigt. Diese Vermutung muss nachfolgend ebenso überprüft werden, wie die zuvor angestellte Vermutung, dass die Verwendung von Peaks, deren Temperatur außerhalb des als linear festgestellten Temperaturbereichs liegt, zu weiteren Unsicherheiten führt.

5.2.3 Analyse der Glühkurven

Kristall P1 - Heizrate 47 K/min:

Der Kristall P1 wurde vor jeder Messung mit einer Dosis von ca. 14 mSv bestrahlt und anschliessend mit einer Heizrate von 47 K/min ausgelesen. Zur Analyse der Glühkurven werden diese wiederum mit Hilfe des Programms GlowFit unter Verwendung des CGDC-Verfahrens in vier einzelne Peaks zerlegt, deren integrierte Intensitäten bestimmt werden. Die auf diese Weise ermittelten Werte werden wie zuvor auf die vor der jeweiligen Messung erfahrene Dosis normiert. Tabelle 5.4 gibt auf diese Weise ermittelten Counts/mSv für die gesamte Glühkurve, die Summe aus den Peaks Vier und Fünf sowie den Peak Fünf alleine an und beinhaltet außerdem die daraus bestimmten Mittelwerte sowie die (prozentuelle) Standardabweichung.

Messdatum	Counts/mSv Gesamtfit	Counts/mSv Peaks 4 & 5	Counts/mSv Peak 5
28.06.2011	1915	1421	995
29.06.2011	1757	1380	1020
30.06.2011	1818	1384	1010
01.07.2011	1835	1436	1047
06.07.2011	1850	1486	1070
Mittelwert	1835	1421	1029
Standardabweichung in %	57	43	30
	3,10	3,05	2,91

Tabelle 5.4: Messreihe Kristall P1: Counts/mSv für den gesamten Fit, die Peaks 4 & 5, sowie den Peak 5

Ein Vergleich mit Tabelle 5.3 zeigt, dass die Nutzung einer festen Heizleistung von 26,2 W eine Verbesserung der Reproduzierbarkeit zur Folge hat. Diese Verbesserung fällt bei der Integration des Gesamtfits am größten aus, zeigt sich jedoch auch bei der Integration der Summe aus den Peaks Vier und Fünf sowie bei der Integration des Peaks Fünf. Es bestätigt sich, dass die prozentuelle Standardabweichung im Falle der alleinigen Nutzung des Peaks Fünf zur Dosimetrie am geringsten ausfällt.

Kristall 18 - Heizrate 105 K/min:

Auch Kristall 18 wurde mit einer Dosis von ca. 14 mSv bestrahlt. Anschliessend wurde er mit einer Heizrate von 105 K/min ausgelesen. Analog zur Ermittlung der Counts/mSv im vorherigen Abschnitt, ergeben sich für den Kristall 18 folgende Werte:

Messdatum	Counts/mSv Gesamtfit	Counts/mSv Peaks 4 & 5	Counts/mSv Peak 5
28.06.2011	2204	1655	1297
29.06.2011	1913	1448	1137
30.06.2011	2085	1588	1176
01.07.2011	2272	1746	1364
06.07.2011	2171	1645	1219
Mittelwert	2129	1616	1239
Standardabweichung in %	138	110	92
	6,49	6,82	7,42

Tabelle 5.5: Messreihe Kristall 18: Counts/mSv für den gesamten Fit, die Peaks 4 & 5, sowie den Peak 5

Bei der Betrachtung von Tabelle 5.5 fällt auf, dass die prozentuelle Standardabweichung im Falle der Messreihe „Kristall 18“ unter Verwendung einer Heizrate von 105 K/min deutlich größer ist, als im Fall der Messreihen mit Heizraten von 30 K/min bzw. 47 K/min. Des Weiteren fällt auf,

dass die prozentuelle Standardabweichung steigt, wenn nur die Peaks Vier und Fünf, bzw. nur der Peak Fünf zur Auswertung verwendet werden. Dieses Verhalten steht im Gegensatz zum bisher beobachteten Verhalten der prozentuellen Standardabweichung unter Verwendung der thermisch stabilen Peaks. Um diese Beobachtung erklären zu können und außerdem eine Aussage darüber treffen zu können, wieso sich die prozentuelle Standardabweichung bei der Nutzung einer Heizrate von 105 K/min deutlich verschlechtert, müssen die Glühkurven der Kristalle 18 und P1 miteinander verglichen werden. Dazu zeigen die Abbildungen 5.9 und 5.10 die am 29.06.2011 aufgenommenen Glühkurven der Kristalle P1 und 18, sowie ihre Zerlegung in vier Peaks und eine Untergrundfunktion.

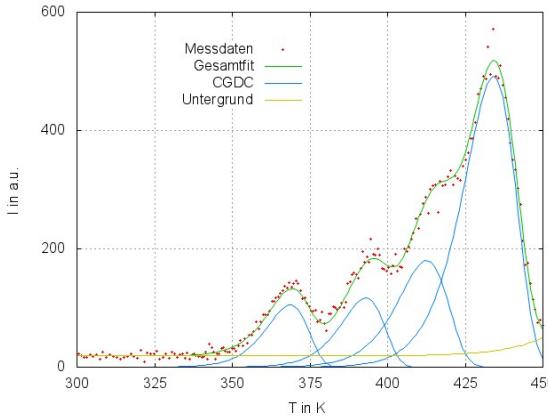


Abbildung 5.9: Kristall P1: Messdaten, Gesamtfit & Zerlegung in vier Peaks und Untergrundfunktion

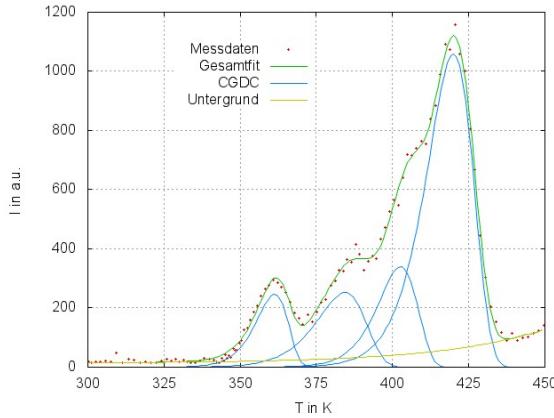


Abbildung 5.10: Kristall 18: Messdaten, Gesamtfit & Zerlegung in vier Peaks und Untergrundfunktion

Vergleicht man Abbildung 5.9 mit Abbildung 5.10 so fällt auf, dass die aufgenommene Glühkurve des Kristalls 18 deutlich größere Intensitäten erreicht, dabei jedoch schmalere Peaks aufweist. Die Glühkurve des Kristalls P1 beginnt bei ca. 350 K und endet bei ca. 450 K, die Glühkurve des Kristalls 18 dagegen beginnt bei ca. 345 K, endet jedoch bereits bei ca. 435 K und ist damit um 10 K also um 10% schmäler. Dies führt dazu, dass die Temperaturabstände zwischen den vier Peaks geringer werden. In diesem Fall ist dies am besten anhand der Peaks Vier und Fünf zu erkennen, die sich im Falle des Kristalls 18 fast im Maximum des Peaks Vier schneiden. Durch diese Überschneidung wird es schwieriger, die Peaks Vier und Fünf sauber zu trennen. Daraus folgt eine größere Ungenauigkeit der Fitparameter des fünften Peaks, die sich in der größeren statistischen Streuung des Flächeninhaltes dieses Peaks bemerkbar macht. Ein weiterer Grund für die deutlich größere prozentuelle Standardabweichung der Messreihe „Kristall 18“ ist das Temperaturintervall, innerhalb dessen bei einer Heizrate von 54,9 W eine konstante Heizrate gewährleistet ist: 410 K - 550 K. Das heißt, dass die Peaks Zwei und Drei vollständig außerhalb dieses Temperaturintervalls liegen, während auch die Form der Peaks Vier und Fünf durch die im Bereich von 300 K bis 410 K nicht konstante Heizrate beeinflusst wird. Dieser Effekt macht sich gerade bei den Peaks Vier und Fünf besonders stark bemerkbar, da diese die größten Intensitäten aufweisen, sodass Abweichungen, die aus der nichtlinearen Natur der Heizkurve resultieren, in diesem Bereich größer ausfallen. Dazu kommt, dass die Untergrundkurve im Fall der Messreihe „Kristall 18“ bereits bei Temperaturen ab 400 K deutlich von der konstanten Dunkelzählrate abweicht und exponentielles Verhalten zeigt. Dies ist eine weitere Fehlerquelle, die speziell die Peaks Vier und Fünf betrifft. Im Fall der Messreihe „Kristall P1“ ist die Heizrate bereits bei Temperaturen ab ca. 375 K als konstant anzusehen, sodass lediglich der ohnehin thermisch nicht stabile Peak Zwei betroffen ist. Außerdem hebt sich der durch Wärmestrahlung bedingte Untergrund in diesem Fall erst ab Tem-

peraturen oberhalb von 435 K vom konstanten Untergrund ab und kann daher weitestgehend vernachlässigt werden. Des Weiteren können die Peaks Vier und Fünf sauberer voneinander getrennt werden.

Abschliessend kann also festgehalten werden, dass die Einstellung einer konstanten Heizleistung von 26,2 W und einer daraus resultierenden Heizrate von 47 K eine geringfügige Verbesserung der Reproduzierbarkeit zur Folge hat, die aus der Vermeidung unregelmässiger Abweichungen der Temperatur von einer linearen Heizkurve resultiert, wie sie bei der Nutzung der computergesteuerten Aufheizkurve auftreten. Eine konstante Heizleistung von 54,9 W liefert dagegen keine Verbesserung der Reproduzierbarkeit, da die resultierende konstante Heizrate in einem zu kleinen Temperaturintervall zu beobachten ist. Des Weiteren erschweren die dichter beieinander liegenden Peaks und der bereits bei geringeren Temperaturen ansteigende exponentielle Untergrund das Aufteilen der Messkurve in einzelne Peaks, sodass speziell die Methode der Verwendung einzelner Peaks statt der integrierten Intensität der gesamten Glühkurve deutlich grössere prozentuelle Standardabweichungen aufweist.

5.3 Kristall 17: Post-Readout-Annealing

Während der Messreihe „Kristall 17“ wurde der verwendete LiF-Kristall im Anschluss an jede Messung zwei Stunden bei 400°C ausgeheizt und dann über ca. 20 Stunden bis Zimmertemperatur heruntergekühlt. Während der Messung wurde eine Heizrate von 30 K/min verwendet. Der Kristall wurde vor jeder Messung mit einer Dosis von ca. 14 mSv bestrahlt. Tabelle 5.6 zeigt die mit „computerized glow curve deconvolution“ ermittelten Werte in Counts/mSv für die drei zuvor erwähnten Verfahren.

Messdatum	Counts/mSv Gesamtfit	Counts/mSv Peaks 4 & 5	Counts/mSv Peak 5
28.06.2011	874	691	543
29.06.2011	855	735	565
01.07.2011	847	691	563
05.07.2011	884	706	538
07.07.2011	979	703	536
Mittelwert	888	705	549
Standardabweichung in %	53	18	14
	5,97	2,57	2,52

Tabelle 5.6: Messreihe Kristall 17: Counts/mSv für den gesamten Fit, die Peaks 4 & 5, sowie den Peak 5

Ein Vergleich mit Tabelle 5.3 zeigt, dass die Einführung eines Anneal-Vorgangs, der eventuell besetzte tiefe Haftstellen leert und gleichzeitig dafür sorgen soll, dass die Bandstruktur des Kristalls vor jeder Bestrahlung möglichst identisch ist, zu einer Verbesserung der Reproduzierbarkeit führt, wenn lediglich die thermisch stabilen Peaks zur Analyse des Thermolumineszenzsignals genutzt werden. Die prozentuelle Standardabweichung für den Fall der Nutzung der gesamten Glühkurve verzeichnet mit einem Wert von 5,97% gegenüber einem Wert von 5,58% im Fall des nicht ausgeheizten Kristalls 01 einen geringfügigen Anstieg. Um diesen Anstieg erklären zu können, ist es hilfreich die Glühkurve des Kristalls 17 zu betrachten, um Änderungen an der Form der Glühkurve, die aus dem Annealvorgang resultieren, untersuchen zu können. Abbildung 5.11 zeigt die am 28.06.2011 aufgenommene Glühkurve des Kristalls 17, sowie die durchgeföhrte Zerlegung der Glühkurve in ihre einzelnen Bestandteile.

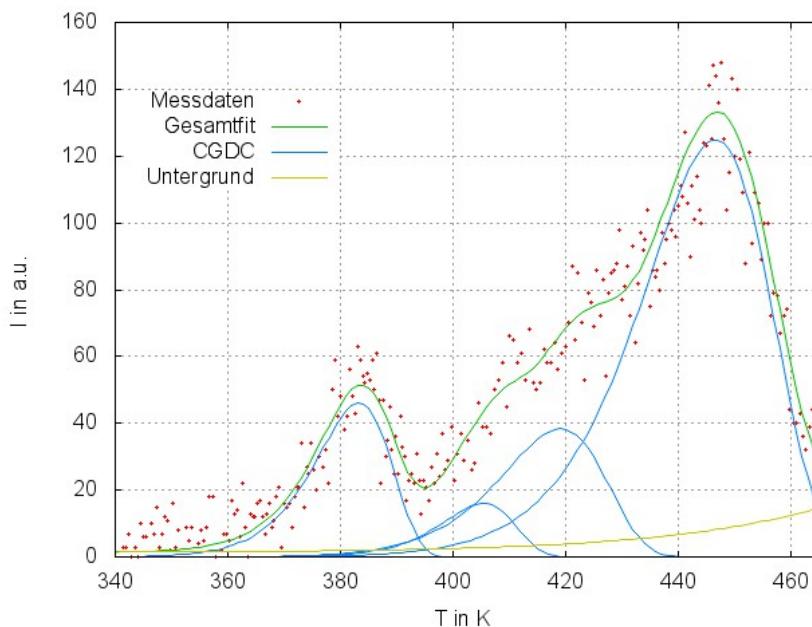


Abbildung 5.11: Kristall 17: Messdaten, Gesamtfit & Zerlegung in vier Peaks und Untergrundfunktion

Ein Vergleich mit Abbildung 5.3 zeigt, dass die in Kapitel 4.2.1 festgehaltene theoretische Erwartung, dass die relative Intensität bezüglich Peak Fünf des Peaks Drei durch die Nutzung eines Annealvorgangs abnimmt, bestätigt werden kann. Nimmt man an, dass die Intensität von Peak Fünf in Abbildung 5.3 ca. 550 und die Intensität von Peak Drei ca. 200 Counts beträgt, so ergibt sich ein Verhältnis von $\frac{I_3}{I_5} \approx \frac{4}{11} \approx 0,36$. Eine genauere Betrachtung von Abb. 5.11 liefert ein Verhältnis von $\frac{I_3}{I_5} \approx \frac{15}{125} \approx 0,12$. Die relative Intensität von Peak Drei gegenüber Peak Fünf ist durch die Nutzung eines Post-Readout-Annealvorgangs also auf ein Drittel abgefallen. Betrachtet man die Verhältnisse des Peaks Zwei zu Peak 5, so ergibt sich aus Abb. 5.3 ein Verhältnis von ca. $\frac{I_2}{I_5} \approx 0,42$, aus Abb. 5.11 ein Verhältnis von $\frac{I_2}{I_5} \approx 0,36$. Es zeigt sich also, dass die relative Intensität von Peak Zwei erheblich weniger stark abnimmt, als diejenige von Peak Drei. Diese beiden Peaks liefern zusammen den zusätzlichen Beitrag, der die Integration der gesamten Glühkurve von der Integration der Peaks Vier & Fünf unterscheidet. Dabei ist vor allem Peak Zwei bei Zimmertemperatur thermisch nicht stabil und weist daher große Schwankungen in der Intensität auf. Diese Schwankungen fallen im Fall des Kristalls 17 stärker ins Gewicht, da der Anteil des Peaks Zwei am gesamten Flächeninhalt größer ist. Aus diesem Grund ist die prozentuelle Standardabweichung des gesamten Flächeninhaltes bei der Messreihe „Kristall 17“ größer, während sich in den Standardabweichungen der Peaks Vier und Fünf eine Verbesserung zeigt, die vermutlich aus der anneal-bedingten Erhaltung der Bandstruktur resultiert.

5.4 Kristall 20: Pre- & Post-Readout-Annealing

Neben einem Post-Readout-Annealing, das identisch zum Annealing während der Messreihe „Kristall 17“ durchgeführt wurde, wurde bei der Messreihe „Kristall 20“ auch ein Pre-Readout-Annealing durchgeführt. Dabei wurde der Kristall nach der Bestrahlung mit einer Dosis von ca. 14 mSv 30 Minuten bei einer Temperatur von 105°C-110°C ausgeheizt und danach innerhalb des geschlossenen Ofens langsam bis 55°C abgekühlt um anschliessend über einen Metallkontakt bis zur Zimmertemperatur abgekühlt zu werden. Anschliessend wurde der Kristall mit einer Heizrate von 30 K/min

ausgelesen. Aufgrund eines Problems mit dem Messaufbau² konnten innerhalb dieser Messreihe lediglich drei Messungen durchgeführt werden. Abb. 5.12 zeigt die am 20.05.2011 aufgenommene Glühkurve des Kristalls 20.

²siehe Kapitel „Probleme mit dem Aufbau“

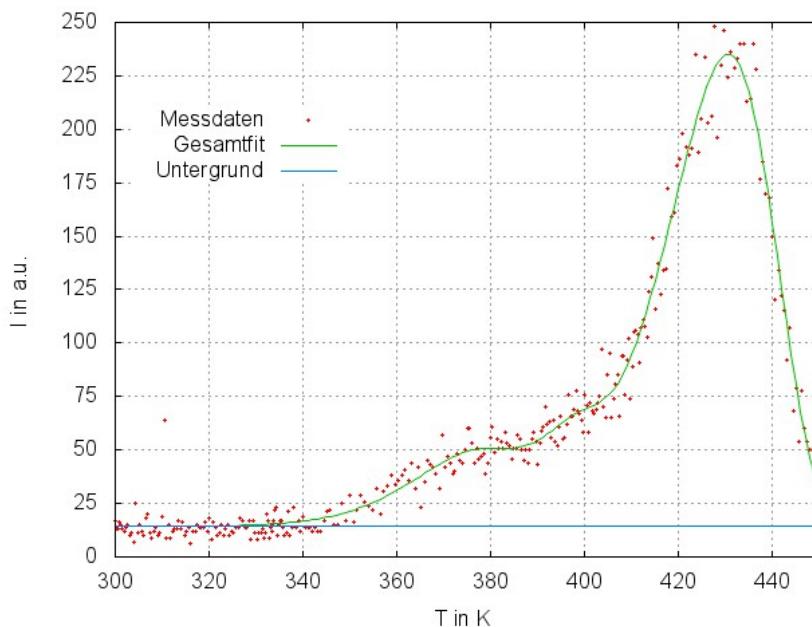


Abbildung 5.12: Kristall 20: Messdaten, Fit & Untergrundfunktion

Es ist zu erkennen, dass der thermisch instabile Peak Zwei vollständig ausgelöscht wurde, während noch Reste von Peak Drei vorhanden sind. Das Verfahren, einen Kristall vor der eigentlich Messung zu heizen um thermisch instabile Peaks aus der Messung auszuschliessen, gilt als Konkurrenzverfahren zur „computerized glowcurve deconvolution“, sodass lediglich der gesamte Flächeninhalt unterhalb der Glühkurve bestimmt wird. Dies macht auch insofern Sinn, dass Teile der Peaks Drei und Vier vom Pre-Readout-Anneal betroffen sind, sodass es schwierig ist, die „Peakreste“ sauber zu separieren. Tabelle 5.7 zeigt die ermittelten Flächeninhalte normiert auf die erfahrene Dosis, sowie den Mittelwert und die Standardabweichung.

Messdatum	Counts/mSv Gesamtfit
25.05.2011	1197
31.05.2011	1102
08.06.2011	1186
Mittelwert	1161
Standardabweichung in %	52 4,45

Tabelle 5.7: Messreihe Kristall 20: Counts/mSv des gesamten Fits, Mittelwert & Standardabweichung

Eine prozentuelle Standardabweichung von 4,45% bedeutet zwar eine Verbesserung der prozentuellen Standardabweichung des gesamten Fits gegenüber dem bisherigen Messverfahren, es muss aber festgehalten werden, dass sich die Methode des Pre-Readout-Annealing in Hinsicht auf die Reproduzierbarkeit einer Thermolumineszenzmessung nicht mit dem Verfahren der „computerized glowcurve deconvolution“ messen kann. Ein möglicher Grund liegt darin, dass es nicht gelungen ist Peak Drei vollständig zu löschen, allerdings muss auch festgehalten werden, dass Peak Drei thermisch deutlich stabiler ist als Peak Zwei, sodass das Hauptziel, die Entfernung des thermisch extrem instabilen Peaks Zwei erreicht wurde. Aufgrund der Ergebnisse dieser Messreihe wurde in den nachfolgenden, abschliessenden Messreihen auf ein Pre-Readout-Annealing verzichtet und stattdessen „computerized glowcurve deconvolution“ verwendet, um die thermisch instabilen Peaks

von der Bestimmung des Flächeninhaltes unter der Glühkurve auszuschliessen.

5.5 Kristalle 21 & P2: konstante Heizleistung & Post-Readout-Annealing

Die bisherigen Untersuchungen haben gezeigt, dass sowohl die Verwendung einer konstanten Heizleistung, als auch die Einführung eines Post-Readout-Anneal Vorgangs eine Verbesserung der Reproduzierbarkeit zur Folge haben. Abschliessend soll nun untersucht werden, ob ein Messvorgang unter Verwendung einer konstanten Heizleistung in Verbindung mit einem Post-Readout-Annealing eine weitere Verbesserung der Reproduzierbarkeit zur Folge hat, oder ob die bisher erzielten Ergebnisse bereits das apparativ bedingte Maximum in der Reproduzierbarkeit darstellen.

Die Kristalle 21 und P2 wurden wiederum einer Dosis von ca. 14 mSv ausgesetzt, anschliessend mit konstanten Heizleistungen von 54,9 W bzw. 26,2 W ausgelesen, dann 2 Stunden bei ca. 400°C ausgeheizt und innerhalb von ca. 20 Stunden bis Zimmertemperatur abgekühlt, bevor sie erneut bestrahlt wurden.

Die Messreihe „Kristall 21“ weist ähnliche Schwächen auf wie die Messreihe „Kristall 18“ und soll dementsprechend hier nur kurz der Vollständigkeit halber angeführt werden. Tabelle 5.8 zeigt die Ergebnisse dieser Messreihe.

Messdatum	Counts/mSv Gesamtfit	Counts/mSv Peaks 4 & 5	Counts/mSv Peak 5
24.06.2011	827	652	476
28.06.2011	810	750	452
29.06.2011	694	655	437
01.07.2011	915	725	485
05.07.2011	830	669	446
Mittelwert	815	690	459
Standardabweichung in %	79	45	21
	9,67	6,47	4,46

Tabelle 5.8: Messreihe Kristall 21: Counts/mSv für den gesamten Fit, die Peaks 4 & 5, sowie den Peak 5

Es zeigt sich, dass die Nutzung einer Heizrate von 105 K/min keinesfalls eine Verbesserung darstellt. Auch die gleichzeitige Verwendung eines Anneal-Vorgangs ändert nichts an der Tatsache, dass die Verwendung einer solch hohen Heizrate nicht zu empfehlen ist, da die Nachteile, wie die Verschiebung der Peaks ineinander und die daraus resultierenden Schwierigkeiten bei der „computerized glowcurve deconvolution“, sowie der bereits bei deutlich niedrigeren Temperaturen exponentiell ansteigende Untergrund und die Nichtlinearität der Heizkurve in einem großen Temperaturintervall nicht aufgefangen werden können.

Im Gegensatz zu den Messreihen mit einer festen Heizrate von 105 K/min lieferte die Nutzung einer Heizrate von 47 K/min in der bisher analysierten Messreihe eine Verbesserung der Reproduzierbarkeit. Wird nun zusätzlich ein Post-Readout-Annealing eingeführt, so ergeben sich die in Tabelle 5.9 dargestellten Ergebnisse.

Messdatum	Counts/mSv Gesamtfit	Counts/mSv Peaks 4 & 5	Counts/mSv Peak 5
24.06.2011	778	595	422
28.06.2011	842	589	416
30.06.2011	815	630	415
Mittelwert	812	604	418
Standardabweichung in %	32	22	4
	3,95	3,66	0,90

Tabelle 5.9: Messreihe Kristall P2: Counts/mSv für den gesamten Fit, die Peaks 4 & 5, sowie den Peak 5

Aufgrund des bereits zuvor erwähnten Auftreten von Problemen mit dem Messaufbau konnten im Rahmen dieser Messreihe lediglich drei Messwerte aufgenommen werden. Abbildung 5.13 zeigt die drei aufgenommenen Glühkurven und den dazugehörigen Untergrund.

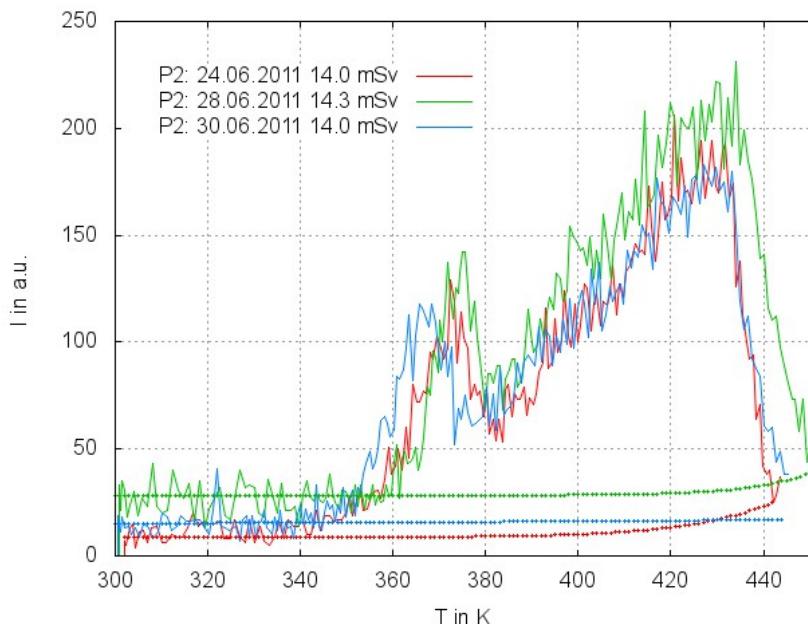


Abbildung 5.13: Kristall P2: aufgenommene Glühkurven & zugehöriger Untergrund (gepunktet)

Es ist erkennbar, dass die drei Glühkurven eine starke Übereinstimmung zeigen. Dabei muss das unterschiedliche Untergrundniveau und die leicht variierende Dosis berücksichtigt werden. Abbildung 5.14 zeigt die drei durch „computerized glowcurve deconvolution“ separierten Peaks Fünf der drei Messungen und gibt die Gesamtanzahl der im Peak enthaltenen Counts an.

Um einen noch besseren Vergleich der drei Peaks zu ermöglichen, wurden diese so verschoben, dass die Positionen ihrer Maxima übereinstimmen. Das Resultat ist in Abb. 5.15 dargestellt.

Es ist deutlich zu erkennen, dass die drei Peaks eine sehr große Übereinstimmung zeigen. Die resultierende Standardabweichung von nur 0,90% bedeutet einen neuen Bestwert und kann als deutliche Verbesserung gegenüber dem in Kapitel 5.1 ermittelten Wert von 3,06% betrachtet werden.

Es kann festgehalten werden, dass die Kombination der Vorteile einer festen Heizleistung von 26,2 W (lineare Heizkurve in einem großen Temperaturintervall), eines Post-Readout-Anneal Vorgangs (Stabilisierung der Peaks durch Erzeugung gleicher Bandstrukturen bei jeder Messung) und der „computerized glowcurve deconvolution“ (Nicht-Berücksichtigung der thermisch instabilen Peaks)

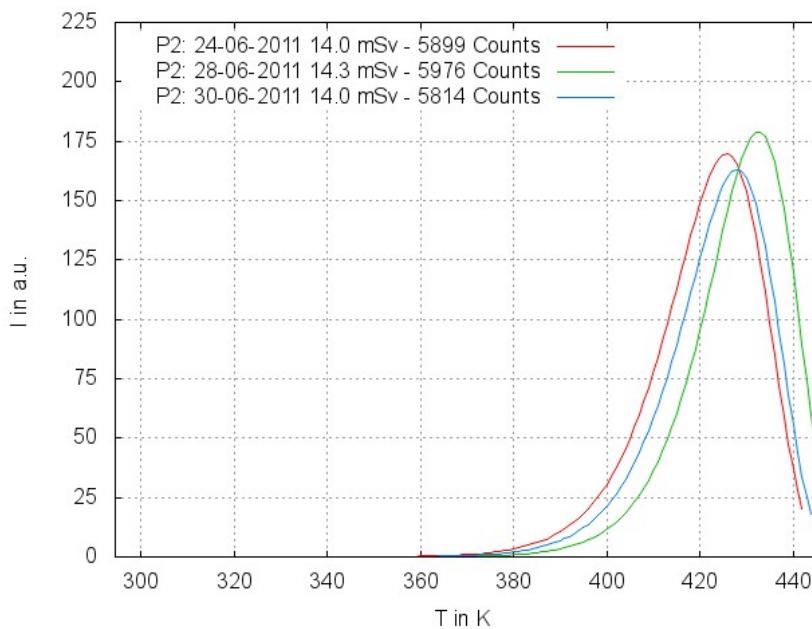


Abbildung 5.14: Kristall P2: Peak Fünf der drei Messungen

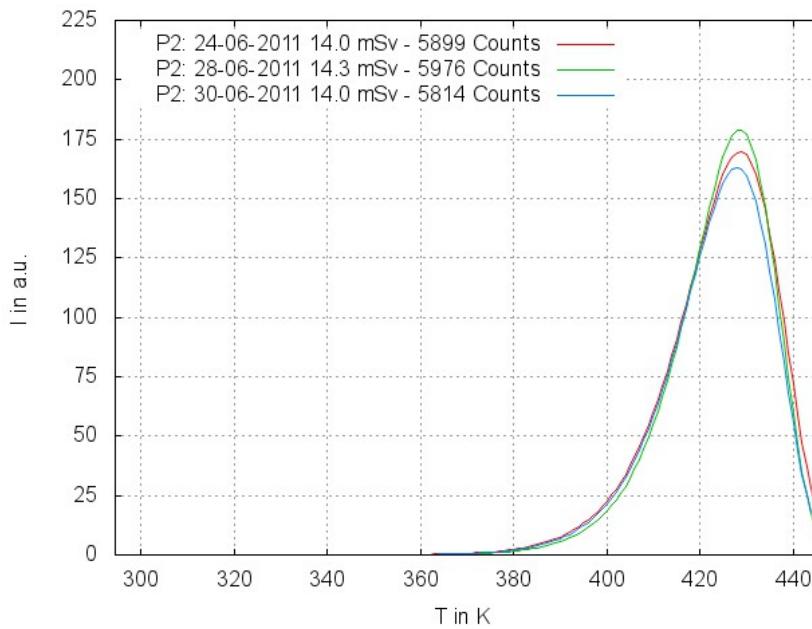


Abbildung 5.15: Kristall P2: Peak Fünf der drei Messungen - angepasste Positionen

zu einem hervorragenden Wert der prozentuellen Standardabweichung des Peakinhaltes von Peak Fünf und damit zu einer hervorragenden Reproduzierbarkeit führt.

5.6 Zusammenfassung

Zur Zusammenfassung der Untersuchung der Reproduzierbarkeit eines Thermolumineszenzaufbaus werden zunächst die ermittelten Werte der prozentuellen Standardabweichung $\sigma\%$ der ver-

schiedenen Messreihen tabellarisch zusammengefasst (Tab. 5.10).

Messreihe	$\sigma\%$ bzgl. Gesamtfit	$\sigma\%$ bzgl. Peaks Vier & Fünf	$\sigma\%$ bzgl. Peak Fünf
Kristall 01 Pos.C	19,86%	13,31%	11,92%
Kristall 01 Pos.A	5,58%	3,91%	3,06%
Kristall P1	3,10%	3,05%	2,91%
Kristall 18	6,49%	6,82%	7,42%
Kristall 17	5,97%	2,57%	2,52%
Kristall 20	4,45%		
Kristall 21	9,67%	6,47%	4,46%
Kristall P2	3,95%	3,66%	0,90%

Tabelle 5.10: Ermittelte prozentuelle Standardabweichungen der einzelnen Messreihen

Es ist zu erkennen, dass das Verfahren der „computerized glowcurve deconvolution“ und die damit verbundene Möglichkeit, lediglich den Hauptpeak „Peak Fünf“ für die Bestimmung der Dosis zu nutzen mit Ausnahme einer Messreihe (Kristall 18) die niedrigste prozentuelle Standardabweichung aufweist. Nach der in Kapitel 4.1 erwähnten ISO-Norm 12794:2000(E) soll der statistische Fehler für ein 95%-iges beidseitiges Sicherheitsintervall bei wiederholter Nutzung eines Thermolumineszenzaufbaus unterhalb von 10% liegen. Dabei lässt sich der statistische Fehler Δ gemäß der Gleichung $\Delta = t \cdot \sigma\%$ aus der prozentuellen Standardabweichung berechnen. Die Konstante t hängt von der Anzahl der an der Bildung des Mittelwertes beteiligten Messwerte und dem benötigten Sicherheitsintervall ab. Das benötigte Sicherheitsintervall ist hier ein 95%-Sicherheitsintervall, die Anzahl der Einzelmessungen variiert je nach Messreihe zwischen drei, vier und fünf Messungen. Die dazugehörigen Werte für die Konstante t lauten:

$$t_3 = 3,182 , \quad t_4 = 2,776 , \quad t_5 = 2,571 \quad (5.1)$$

Wendet man die Formel für den statistischen Fehler auf die Werte der prozentuellen Standardabweichung in Tabelle 5.10 an, so zeigt sich, dass bereits das ursprüngliche Messverfahren die ISO-Norm für die Reproduzierbarkeit von Thermolumineszenzmessungen erfüllt, wenn die „computerized glowcurve deconvolution“ genutzt wird um die erfahrene Dosis lediglich anhand des Flächeninhaltes von Peak Fünf zu bestimmen. Wird eine konstante Heizleistung von 26,2 W anstelle der computergesteuerten Heizleistung verwendet (Messreihe Kristall P1), so erfüllen sowohl die anhand der gesamten Glühkurve ermittelten Werte, als auch die anhand der thermisch stabilen Peaks ermittelten Werte die ISO-Norm. Bei einer Heizleistung von 54,9 W (Messreihen Kristall 18 & 21) verschlechtert sich das Ergebnis, kein Analyseverfahren führt zu einem Ergebnis, das die ISO-Norm erfüllen kann. Wird ein Post-Readout-Anneal Vorgang eingeführt um speziell Peak Fünf zu stabilisieren, führt dies im Fall der Messreihe Kristall 17 dazu, dass die unter Verwendung von „CGDC“ ermittelten Werte der thermisch stabilen Peaks der ISO-Norm genügen, lediglich unter Einbeziehung der thermisch instabilen Peaks kann die Norm nicht erfüllt werden. Die Einführung eines Pre-Readout-Anneal Vorgangs als Konkurrenzverfahren zur „CGDC“ führt zu keinem befriedigenden Ergebnis, da die ISO-Norm nicht erfüllt werden kann. Wird eine feste Heizleistung von 26,2 W verwendet und gleichzeitig ein Post-Readout-Annealing angewendet, so wird ein Bestwert des statistischen Fehler von 2,86% erreicht, wenn lediglich Peak Fünf zur Auswertung genutzt wird. Ein Test des professionellen TLD Reader Harshaw 8800 unter Verwendung von TLD-100 Ring-Dosimetern ergab statistische Fehler zwischen 1,7% und 6,7% [5], sodass der im Rahmen dieser Untersuchungen festgestellte Bestwert von 2,86% als sehr gutes Ergebnis festgehalten werden kann.

6 Probleme mit dem Aufbau

Während der Dauer, der in dieser Bachelorarbeit durchgeführten Messreihen, sind mehrmals Probleme mit dem Messaufbau aufgetreten. Nachfolgend sollen diese Probleme dargestellt und erläutert werden, weiterhin sollen Verbesserungen am Aufbau vorgeschlagen werden, die das Auftreten dieser oder ähnlicher Probleme in Zukunft vermeiden könnten.

6.1 Temperaturmessung

Nach einem Defekt des Temperaturfühlers musste dieser während der Messungen ausgetauscht werden. Dazu mussten vorübergehend die innere und die äußere Kühlabschirmung entfernt werden. Die Abbildungen 6.1 und 6.2 zeigen die unter Nutzung der computergesteuerten Heizleistung aufgenommenen Heizkurven vom 01.06.2011 (vor dem Austausch des Temperaturfühlers), 22.06.2011 (nach dem Austausch des Temperaturfühlers), 28.06.2011 (nach Verbesserung des thermischen Kontaktes) und 07.07.2011 (keine Änderungen am Messaufbau gegenüber dem 28.06.2011) im Vergleich mit der angestrebten Heizkurve (Start bei 22°C, Steigung von 30°C/min).

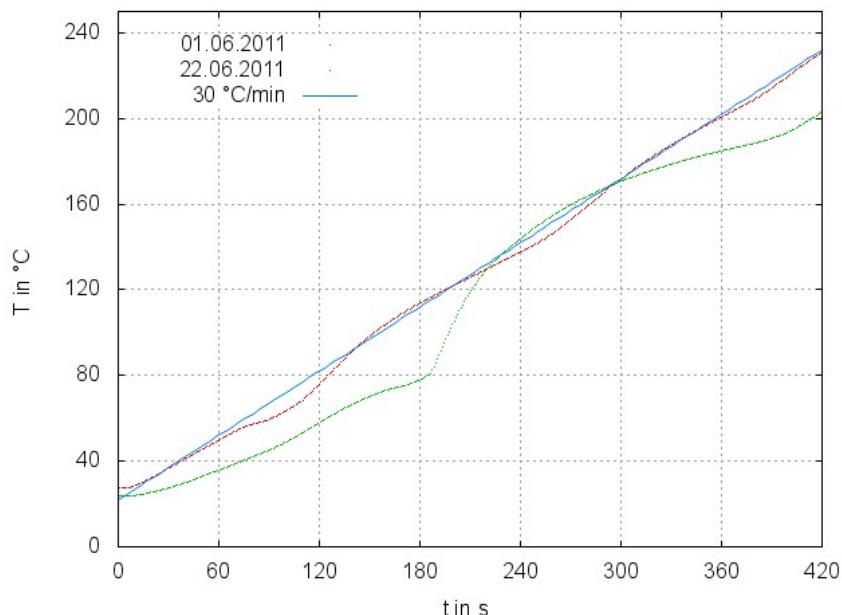


Abbildung 6.1: Heizkurven vom 01.06.2011 und 22.06.2011 im Vergleich mit einer Sollkurve

Es ist klar zu erkennen, dass bereits die Aufheizkurve vom 01.06.2011 deutliche Abweichungen von der idealen Aufheizkurve mit einer Steigung von 30°C/min aufweist. Dabei handelt es sich um die in Kapitel 4.3 behandelten Schwankungen, die zu der Überlegung führten, die computergesteuerte Heizleistung durch eine feste Heizleistung zu ersetzen. Die Aufheizkurve vom 22.06.2011 weist allerdings keinerlei Linearität mehr auf, die zuvor festgestellten Abweichungen sind deutlich größer. Um diesen Fehler, der nach dem Austausch des Temperaturfühlers auftrat, zu beheben, wurden zunächst verschiedene Anordnungen der inneren und äußeren Kühlabschirmung getestet. Dies hatte jedoch keinerlei Auswirkungen auf die Form der Heizkurve. Der aufgetretene Fehler lag vielmehr in einem mangelnden thermischen Kontakt des Temperaturfühlers mit dem Probenkopf.

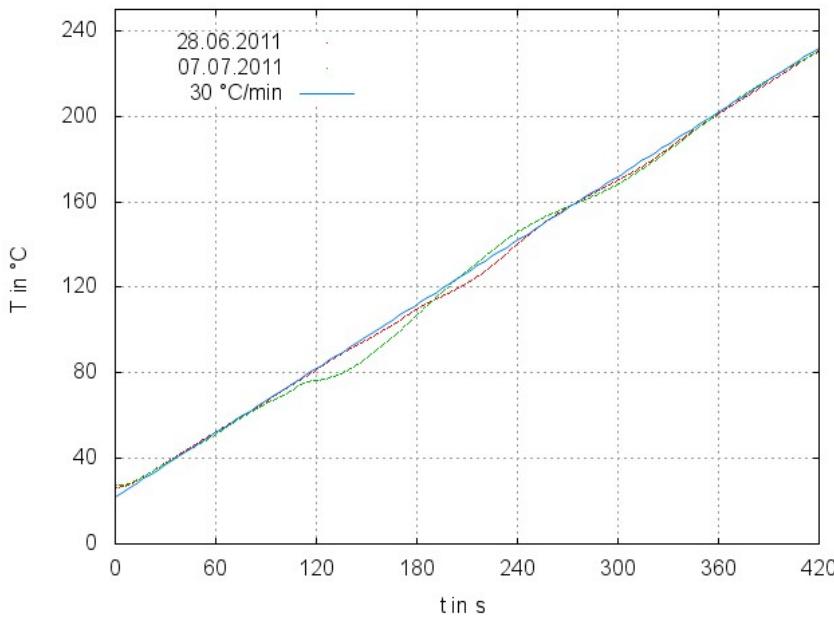


Abbildung 6.2: Heizkurven vom 28.06.2011 und 07.07.2011 im Vergleich mit einer Sollkurve

Um den Kontakt wieder zu verbessern, wurde der Temperaturfühler mit einer Schraube näher an den Probenkopf gedrückt. Die anschliessende Messung am 28.06.2011 zeigt eine Heizkurve, die dem linearen Idealfall näher kommt, als die ursprünglich am 01.06.2011 vor dem Auftreten des Fehlers aufgenommene Messkurve. Dies spricht dafür, dass der thermische Kontakt bereits vor dem Austausch des Temperaturfühlers nicht optimal war. Eine weitere Messung am 07.07.2011 zeigt wiederum ähnliche Abweichungen von der linearen Heizkurve, wie es bereits am 01.06.2011 der Fall war. Dies spricht dafür, dass sich der thermische Kontakt mit der Zeit aufgrund der wiederholten Erwärmung auf über 270°C verschlechtert. Der schlechte thermische Kontakt erklärt auch die in Kapitel 5.2.2 beobachtete Abhängigkeit des Untergrundes von der Heizrate: eine Heizrate von 105 K/min kann vom Temperaturfühler aufgrund des mangelhaften thermischen Kontaktes nicht innerhalb des Zeitintervalls zweier aufeinanderfolgender Messwerte erfasst werden, sodass die gemessene Temperatur einem falschen Zeitpunkt zugeordnet wird, da die Temperatur des Probenkopfes bei einem Messzeitpunkt höher ist, als die mit dem Temperaturfühler festgestellte Temperatur.

Aufgrund dieser Probleme bei der Messung der Temperatur ist es umso mehr zu empfehlen, die Methode der computergesteuerten Heizleistung durch die Verwendung einer konstanten Heizleistung zu ersetzen. Wird eine konstante Heizleistung verwendet, so kann man die daraus resultierende Heizkurve einmalig aufnehmen, um sicherzustellen, dass der Zusammenhang zwischen Zeit und Temperatur linear ist. Ist dies im für die Thermolumineszenzdosimetrie mit TLD 100 Kristallen interessanten Temperaturbereich der Fall, so kann die Glühkurve als Intensität in Abhängigkeit von der Zeit aufgenommen werden, ohne dass der physikalische Zusammenhang einer Proportionalität zwischen Dosis und Flächeninhalt unter der Glühkurve verloren geht, allerdings mit dem Vorteil, dass die Zeit deutlich präziser gemessen werden kann, als die Temperatur. Stellt man also einmalig sicher, dass der Zusammenhang zwischen Zeit und Temperatur in guter Näherung linear ist, so wird sich an diesem Zusammenhang aufgrund der fest eingesetzten Heizpatrone und dem bei jeder Messung identischen Probenkopf nichts ändern, sodass eine Messung der Zeit ausreicht. Um die Heizkurve noch präziser zu gestalten, wäre es theoretisch möglich das Trägerheizverfahren durch ein Heizgasverfahren zu ersetzen. Dazu müsste allerdings ein vollständig neuer Probenkopf entworfen werden, der eine Zu- und Abführung für heißes Stickstoff enthält. Diese Änderung ist

theoretisch zwar umsetzbar und verspricht auch gute Ergebnisse, wird das Heizgasverfahren doch in nahezu allen professionell hergestellten TLD-Readern verwendet, birgt jedoch einige Schwierigkeiten in der Umsetzung. Ob der mit diesem Umbau verbundene Aufwand gerechtfertigt wäre, darf bei Betrachtung der ermittelten Reproduzierbarkeit des Aufbaus, die sich durchaus mit den Werten professioneller Geräte messen lassen kann, zumindest bezweifelt werden.

6.2 Bestrahlungsapparat

Gegen Ende der Messungen, die im Rahmen dieser Bachelorarbeit durchgeführt wurden, kam es zu einem weiteren Problem, dessen Ursache nicht ermittelt werden konnte. Am 05.07.2011 wurden die vier Kristalle 17, 20, 21 und P2 parallel in derselben Entfernung von der Strahlungsquelle bestrahlt. Während der Messungen dieser Kristalle wurde jedoch lediglich bei den Kristallen 17 und 21 ein Thermolumineszenzsignal registriert, die Kristalle 20 und P2 wiesen keine Dosis auf. Am 06.07.2011 wurden die Kristalle 1, 18 und P1 bestrahlt und daraufhin ausgelesen. Bei allen Kristallen wurde ein Signal registriert, dass sich in der richtigen Größenordnung befindet. Am 07.07.2011 wurden wiederum die Kristalle 17, 20, 21 und P2 bestrahlt. Lediglich Kristall 17 wies bei der anschliessenden Messung ein Thermolumineszenzsignal auf, die Messungen der drei anderen Kristalle lieferten lediglich den typischen exponentiellen Verlauf der Untergrundkurve. Eine erneute Bestrahlung dieser drei Kristalle am 11.07.2011 lieferte keine Besserung. Nachdem dieser Fehler bei der Bestrahlung des Kristalls 01 am 06.07.2011 nicht aufgetreten war, obwohl der Fehler einen Tag zuvor bereits bei zwei anderen Kristallen aufgetreten war, wurde Kristall 01 am 11.07.2011 ein weiteres Mal bestrahlt. Diesmal wies auch Kristall 01 bei der Messung kein Thermolumineszenzsignal auf, es scheint sich also nicht um einen Fehler an den Kristallen 20, 21 und P2 zu handeln. Um Verunreinigungen in den Kanälen des Bestrahlungapparates auszuschliessen, wurde die Quelle daraufhin aus dem Bestrahlungsapparat entfernt. Kristall 01 wurde daraufhin ca. 19 Stunden direkt neben der Strahlungsquelle gelagert und anschliessend ausgelesen. Anhand der zuvor mit Kristall 01 durchgeföhrten Messungen sollte auf diese Weise die Dosis ermittelt werden, die der Kristall innerhalb von 19 Stunden Lagerung neben der Strahlungsquelle erfahren hat. Bei der Messung konnte letztlich ein Thermolumineszenzsignal registriert werden. Durch Bestimmung des Flächeninhaltes und Vergleich mit den bisherigen Messungen konnte die Dosis anhand dieser Messung auf ca. 54 mSv abgeschätzt werden. Die im Verlauf der Untersuchungen zu dieser Arbeit verwendete Dosis von ca. 14 mSv wurde auf Position A des Bestrahlungsapparates (1,5 cm Entfernung zur Quelle [10]) in einem Zeitraum von 93 Minuten erreicht. Bedenkt man also, dass der Kristall vor der hier analysierten Messung 19 Stunden lang direkt neben der Quelle lag, und dass der Zusammenhang zwischen Zeit und Dosis bei gleicher Entfernung linear ist, so kommt man zu dem Ergebnis, dass die ermittelte Dosis von 54 mSv grob eine Größenordnung zu klein ist. Da ein Fehler am Photomultiplier durch den Vergleich der Untergrundzählraten vor und nach dem Auftreten dieses Fehlers ausgeschlossen werden kann, handelt es sich vermutlich um einen Fehler in der verwendeten Stabquelle. Aus welchem Umstand der Fehler genau resultiert, konnte nicht festgestellt werden, eventuell handelt es sich um eine Verunreinigung der Quelle.

Ein weiteres Problem mit dem Bestrahlungsapparat ergibt sich direkt aus dem Aufbau desselben. Die Kristalle, die bestrahlt werden sollen, werden in Plastikröhrchen gelegt, die in Länge und Durchmesser so gewählt wurden, dass sie die Plätze im Bestrahlungsapparat ausfüllen. Dabei beträgt der Durchmesser der Röhrchen 6 mm, die Kantenlänge des quadratischen Kristalls jedoch nur 3,2mm [10], sodass der Kristall Verschiebungen um ca. einen Millimeter erfahren kann. In einer Entfernung von 15 mm zur Quelle beträgt die prozentuelle Änderung der Dosisleistung, die durch eine Verschiebung von einem Millimeter bedingt ist, nach der Gaußschen Fehlerfortpflanzung:

$$\dot{D} = \Gamma \cdot \frac{A}{r^2} \Rightarrow \Delta \dot{D} = 2 \cdot \Gamma \cdot \frac{A \cdot \Delta r}{r^3} \Rightarrow \frac{\Delta \dot{D}}{\dot{D}} = 2 \frac{\Delta r}{r} \quad (6.1)$$

Für $r = 15$ mm und $\Delta r = 1$ mm ergibt sich dann $\frac{\Delta \dot{D}}{\dot{D}} \approx 13\%$. Bei ruhiger Handhabung des Probenröhrchens kann zumindest gewährleistet werden, dass der Extremfall einer Verschiebung um einen Millimeter nicht auftritt, trotz dessen muss festgehalten werden, dass eine Ungenauigkeit von 13% bei der Berechnung der Dosisleistung inakzeptabel ist. Eine Möglichkeit diese Ungenauigkeit zu verringern, wäre ein neu konzipierter Bestrahlungsapparat, bei dem der zu bestrahlende Kristall nicht senkrecht zur Bestrahlungsebene von oben eingebracht wird, sondern von der Seite des Bestrahlungskörpers aus in diesen eingeführt wird. Dies hätte auch den Vorteil, dass die Entfernung zur Quelle deutlich variabler eingestellt werden könnte. Dadurch würde z.B. auch eine Messreihe zur Bestimmung des Zusammenhangs zwischen der Thermolumineszenzantwort in Counts/mSv und der Dosisleistung ermöglicht. Eine solche Messung erscheint unter Verwendung des aktuellen Bestrahlungsapparates, der nur drei unterschiedliche Entfernungen von der Quelle und damit nur drei verschiedene Dosisleistungen erlaubt, nicht als sinnvoll.

7 Ausblick

Das Ziel dieser Bachelorarbeit, die Reproduzierbarkeit von Thermolumineszenzmessungen mit dem zur Verfügung gestellten Aufbau systematisch zu untersuchen und wenn möglich so zu verbessern, dass die ISO-Norm für Thermolumineszenzdosimetrie-Systeme erfüllt werden kann, wurde erfüllt. Der ermittelte Bestwert für den statistischen Fehler aufeinanderfolgender Messungen von 2,86% kann sich mit teuren¹, professionellen Readern messen. Der Nutzen der computergestützten Zerlegung der Glühkurve in einzelne Peaks („computerized glowcurve deconvolution“) konnte nachgewiesen werden. Das frei zur Verfügung stehende Programm GlowFit hat sich in diesem Zusammenhang sehr gut bewährt, bietet nebenbei noch die im Rahmen dieser Arbeit nicht genutzte Möglichkeit die Energieniveaus der Haftstellen zu bestimmen, und kann in Zukunft im Rahmen des fortgeschrittenen Praktikums verwendet werden. Des Weiteren hat sich gezeigt, dass die Verwendung einer konstanten Heizleistung von 26,2 W und einer daraus resultierenden Heizrate von 47 K/min gegenüber der computergesteuerten Heizleistung zu bevorzugen ist, da auf diese Weise auftretende Probleme bei der Temperaturmessung minimiert werden können. Die zusätzliche Nutzung eines Post-Readout-Anneal Vorgangs lieferte den Bestwert für den statistischen Fehler aufeinanderfolgender Messungen, muss im Rahmen des F-Praktikums allerdings nicht notwendigerweise Anwendung finden, da der Anneal-Vorgang fast 24 Stunden einnimmt und die dadurch erreichte zusätzliche Präzision im Rahmen des Praktikums als nicht notwendig erscheint.

Bei weiterführenden Arbeiten an diesem Aufbau sollte der Fokus sicherlich darauf liegen, den Bestrahlungsapparat zu verbessern, um einerseits die Dosisleistung zuverlässiger berechnen zu können und andererseits die Möglichkeit zu bekommen, den Zusammenhang zwischen Dosisleistung und Flächeninhalt der Glühkurve bei konstanter Dosis zu ermitteln, da im Rahmen dieser Arbeit gezeigt werden konnte, dass auf jeden Fall eine Abhängigkeit zwischen Dosisleistung und dem Thermolumineszenzsignal besteht. Um in diesem Zusammenhang die Gültigkeit des Modells von Chen und Leung² untersuchen zu können, müsste das Thermolumineszenzsignal mit einem Spektrometer auf seine spektrale Zusammensetzung untersucht werden.

¹eine Anfrage per E-Mail ergab, dass sich das Einsteigermodell Harshaw TLD3500 in einem Preisbereich zwischen 26.000 und 28.000 Euro bewegt

²siehe Kapitel 4.4

8 Danksagung

9 Quellenverzeichnis

- [1] Paul A. Tipler, Ralph A. Llewellyn - „Moderne Physik“ - 2. Auflage
- [2] <http://de.wikipedia.org/wiki/Lichtspektrum> - gefunden am 20.07.2011 um 15:07 Uhr
- [3] http://en.wikipedia.org/wiki/Draper_point - gefunden am 20.07.2011 um 15:16 Uhr
- [4] http://www.thermo.com.cn/Resources/200802/productPDF_25230.pdf - gefunden am 20.06.2011 um 20:16 Uhr
- [5] D.M.Moor, B.Horspool, R.P.Stokes - „Performance of the Harshaw DXT-RAD(TLD100) dosimeter“
- [6] B. Ben Shachar, Y.S. Horowitz - „Anomalous thermally induced fading of annealed and unannealed LiF:Mg,Ti (TLD-100, Harshaw) using computerized glow curve deconvolution“
- [7] Claudio Furetta - „Handbook of thermoluminescence“ - 2nd edition
- [8] Reuven Chen - „Dose Dependence of Thermoluminescence (TL) and Optically Stimulated Luminescence with Uniform Excitation“ aus dem Buch von Y.S.Horowitz - „Microdosimetric Response of Physical and Biological Systems to Low- and High-LET Radiations“, Elsevier (2006)
- [9] R.Chen, P.L.Leung - „A model for dose-rate dependence of thermoluminescence intensity“
- [10] Stefan Korsten - „Aufbau und Erprobung eines Messstandes für die Thermolumineszenzdosimetrie“ - Diplomarbeit - Westfälische Wilhelms-Universität Münster 2010
- [11] M.Puchalska, P.Bilski - „GlowFit - a new tool for thermoluminescence glow-curve deconvolution“
- [12] M.Abramowitz, I.Stegun - „Handbook of Mathematical Functions“ - 1972
- [13] Michèle Neumann - „Optimierung eines Aufbaus zur Thermolumineszenzdosimetrie“ - Bachelorarbeit - Westfälische Wilhelms-Universität Münster 2010
- [14] Proceedings of The Third International Conference on Luminescence Dosimetry, held at the Danish AEC Research Establishment Riso 11-14 October 1971: Toshiyuki Nakajima - „On the Sensivity Factor Mechanism of Some Thermoluminescence Phosphors“
- [15] Prof.Dr.K.J.Klose - „Einführung in die Radiologie - Anatomie in der Bildgebung“ - Universität Marburg - <http://online-media.uni-marburg.de/radiologie/glossar/r2.htm> - gefunden am 20.07.2011 um 12:56 Uhr
- [16] http://www.rpdinc.com/html/harshaw_tld_100_ribbons.html - gefunden am 20.07.2011 um 12:58 Uhr
- [17] L. da Rosa, D. Regulla, U. Fill - „Reproducibility study of TLD-100 micro-cubes at radiotherapy dose level“
- [18] C. Zeituni, E. Moura - „Reproducibility study of TLD-100 dosimeters for ^{125}I seeds used in brachytherapy“
- [19] T.M. Piters - „A study into the mechanism of thermoluminescence in a LiF:Mg,Ti dosimetry material“ - Delft University of Technology

- [20] L.Z. Luo, J.E. Rotunda - „Performance of TLD-100H two-element dosimeter“
- [21] B. Ben Shachar, Y.S. Horowitz - „Thermoluminescence in annealed and unannealed LiF:Mg,Ti (TLD-100, Harshaw) as a function of glow curve heating rate and using computerized glow curve deconvolution“
- [22] A. Aalbers, A. Bos, B. Mijnheer - „Proceedings of the Symposium on Thermoluminescence Dosimetry“ - 30.03.1988
- [23] A. Blak, S. Watanabe - „Physical parameters of Glow Peaks 4, 5 and 6 in TLD-100 (LiF:Mg,Ti)“
- [24] B. Ben Shachar - „LiF thermoluminescent dosimeter - to measure the whole glow curve, peak 5 alone or peak (4+5)?“
- [25] E. Podgorsak - „Review of Radiation Oncology Physics: A Handbook for Teachers and Students“ - Mai 2003
- [26] M. Pautsch, M. Lüpke, H. Seifert - „Auswirkung unterschiedlicher Preheat-Verfahren auf den Glühkurvenverlauf und die untere Nachweisgrenze von TLD-100H“
- [27] L. Larsson, R. Katz - „Supralinearity of Thermoluminescent Dosimeters“
- [28] A. Yazici, Z. Öztürk, M. Bedir - „The Investigation of Thermoluminescence Emission Bands of LiF:Mg,Ti (TLD-100) by a Simple Developed Model“

10 Anhang

10.1 Berechnung der effektiven Ordnungszahl von Lithiumfluorid

Die effektive Ordnungszahl einer Verbindung aus verschiedenen Stoffen berechnet sich nach der Formel [7]:

$$\overline{Z} = \sqrt[x]{a_1 Z_1^x + a_2 Z_2^x + \dots} \quad (10.1)$$

Dabei ist $a_i = \frac{n_i(Z_i)}{\sum_i n_i(Z_i)}$ der Anteil der Gesamtelektronen im Material, der zum Element Z_i gehört, $n_i = N_A \cdot Z_i$ die Anzahl Elektronen in mol, die zum Element Z_i gehören. Der Wert x beträgt $x = 2,94$. Lithiumfluorid setzt sich zu gleichen Teilen aus Lithium und Fluor zusammen, dabei beträgt die Ordnungszahl von Lithium $Z_{Li} = 3$, die Ordnungszahl von Fluor $Z_F = 9$. Dann ergibt sich $a_{Li} = \frac{3}{12} = 0,25$ und $a_F = \frac{9}{12} = 0,75$ und damit $\overline{Z} \approx 8,2$.

c]chapterLiteraturverzeichnis

Literaturverzeichnis

[tes] *test.*