figt ans



Interner Bericht DESY F35D-96-06 März 1996

> Untersuchungen zur Strahlungsresistenz polymerer Materialien für den Einsatz in Experimenten der Hochenergiephysik

> > von

A. Dannemann

	and the second se	COLUMN TWO IS NOT THE OWNER.
Eigentern de Promity at	DESY	ini-licitbek
Zu 1	5. APR. 1998	
Lein 1		
Law		

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

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

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

:

<u>.</u>

Untersuchungen zur Strahlungsresistenz polymerer Materialien für den Einsatz in Experimenten der Hochenergiephysik

DISSERTATION

zur Erlangung des Doktorgrades des Fachbereichs Physik der Universität Hamburg

> vorgelegt von Andreas Dannemann aus Lübeck

1/

Gutachter der Dissertation:

Prof. Dr. K. Wick Prof. Dr. W. Scobel

Gutachter der Disputation:

Datum der Disputation:

Sprecher des Fachbereiches Physik und Vorsitzender des Promotionsausschusses:

Prof. Dr. K. Wick Prof. Dr. U. Strohbusch

27.März 1996

Prof. Dr. B. Kramer

Hamburg 1996

Abstract

Radiation stability of scintillators and light guides is of fundamental importance for experiments in high energy physics, because detectors have to provide highly reliable and precise measurements over several years.

This dissertation describes changes due to irradiation in optical properties of wave length shifter materials based on polymethylmethacrylate (PMMA) and of scintillator materials based on polystyrene (PS). These polymers are investigated after irradiation in γ - and neutron fields under different conditions of absorbed dose, dose rate and surrounding atmosphere. This work presents studies of the dependencies of optical damage such as creation of absorption centers or destruction of colour dyes by the absorbed radiation dose. In much of the applied dose range from 1 kGy to 100 kGy a linear dependence of damage levels on the absorbed dose is observed. The influence of additives in the materials is also reported.

The presence of oxygen before, during and after irradiation plays an important role in optical damage intensity and development. On the one hand, higher degradations can be detected in some cases if oxygen is present during irradiation compared to damage levels without oxygen. On the other hand, the presence of oxygen after an irradiation leads to a clear decrease of the initial damage level, which is observed directly after the end of irradiation, to a final damage level constant in time. The duration of the recovery process from the initial to the final damage heigth is determined by the diffusion of oxygen into the material. For approximately 2 mm thick plates of PS based materials the recovery process takes some days at standard temperature and pressure, for PMMA based materials of the same thickness some 100 days of recovery time is observed under the same conditions.

By means of a diffusion model for both materials a dose rate can be calculated below which complete recovery to the final damage level occurs during irradiation. For PS based scintillators (2.6 mm thick) the dose rate for complete recovery is 57 Gy/h, for PMMA based wave length shifters (2 mm thick) it is 0.44 Gy/h. For the ZEUS calorimeter operating at the electron proton collider HERA at DESY in Hamburg in an estimated dose rate level of 0.04 Gy/h in air atmosphere, a recovery to final damage values during operation can be concluded.

A specially developed algorithm and computer code allows to simulate light propagation throughout rectilinear parallelpipeds of scintillators and light guides. Results obtained from relatively compact test samples can be applied to the larger geometries of optical components in the ZEUS calorimeter. Calculations for the ZEUS calorimeter which will absorb 3kGy dose during an operating time of 10 years, show that calorimeter performance will not be significantly affected by radiation damage.

Kurzzusammenfassung

Die Strahlungsbeständigkeit von Szintillatoren und Lichtleitern in Detektoren der Hochenergiephysik ist von Wichtigkeit, weil diese Geräte über einen Zeitraum von vielen Jahren zuverlässige und hochgenaue Meßergebnisse an Teilchenbeschleunigern liefern sollen.

Diese Dissertation befaßt sich mit den Änderungen der optischen Eigenschaften von Wellenlängenschiebermaterialien auf Basis von Polymethylmethacrylat (PMMA) und von Szintillatoren auf Basis von Polystyrol (PS) durch Strahlungseinwirkung. Die Stoffe werden nach Bestrahlung in γ - und Neutronenstrahlungsfeldern unter verschiedenen Bedingungen wie z.B. Gesamtdosis, Dosisleistung und Atmosphäre untersucht. Es werden die Abhängigkeiten der optischen Strahlenschädigungen wie Bildung neuer und Zerstörung vorhandener Absorptionszentren von der absorbierten Dosis studiert. In weiten Teilen des untersuchten Dosisbereiches von etwa 1 kGy bis 100 kGy läßt sich ein linearer Zusammenhang zwischen Schadenshöhe und absorbierter Strahlungsdosis für alle untersuchten Stoffe feststellen. Der Einfluß von Zusatzstoffen in den Materialien auf die Schadenshöhe wird ebenfalls betrachtet.

Die Verfügbarkeit von Sauerstoff während und nach Bestrahlung spielt für die Schadenshöhen und den zeitlichen Schadensverlauf eine wichtige Rolle. So können bei Sauerstoffanwesenheit während einer Bestrahlung zum Teil stärkere Zerstörungen gemessen werden als ohne Sauerstoff. Andererseits führt Sauerstoff nach Ende einer Bestrahlung zu einem deutlichen Rückgang der direkt nach Bestrahlungsende feststellbaren Schadenshöhe (Anfangsschaden) auf eine zeitlich konstante Restschadenshöhe (Endschaden). Die Diffusion von Sauerstoff in den Materialien bestimmt die Zeitspanne bis zum Erreichen des Endschadens und beträgt in den hauptsächlich untersuchten, einige Millimeter dicken plattenförmigen Proben für PS-basierende Stoffe einige Tage und für PMMA-basierende Stoffe einige 100 Tage bei Zimmertemperatur und Luftumgebung.

Für beide untersuchte Basismaterialien wird mit Hilfe eines Diffusionsmodells für Sauerstoff die Dosisleistung angegeben, unterhalb der die Materialien sich bereits während eines Bestrahlungsvorganges in Luftumgebung ausheilen und sich daher immer im Endschadenszustand befinden. Im Falle des Szintillators auf PS-Basis (2,6 mm dick) beträgt diese Dosisleistung 57 Gy/h, bei PMMA-basierenden Wellenlängenschiebermaterialien (2 mm dick) 0,44 Gy/h. Für das ZEUS-Kalorimeter, das am HERA-Teilchenbeschleuniger des DESY in Hamburg einem geschätzten Strahlungsuntergrund von weniger als 0,04 Gy/h in Luftumgebung ausgesetzt ist, bedeutet dies eine ständige Ausheilung während des Beschleunigerbetriebes auf die (geringere) Endschadenshöhe.

Mit einem eigens entwickelten Algorithmus — und seiner Umsetzung in ein Computerprogramm — zur Simulation von Lichtwegen in quaderförmigen Proben werden die Laborerkenntnisse an vergleichsweise kompakten Proben auf die wesentlich größeren Geometrien im ZEUS-Kalorimeter übertragen. Berechnungen ergeben für ZEUS in 10 Jahren Betriebsdauer bei einer geschätzten Gesamtdosis von 3 kGy durch Untergrundstrahlung keine störenden strahlungsbedingten Einflüsse auf die Kalorimetereigenschaften.

Inhaltsverzeichnis

1	Eiı	leitung	1
2	Ma	terialien und Mechanismen	3
	21	Übersicht der verwendeten Materialien	้า
		2.1.1 Szintillator	3
		2.1.2 Wellenlängenschieber	4
	2.2	Strahlung und Materie	6
		2.2.1 Grundbegriffe	ĥ
		2.2.2 Wechselwirkungen von Neutronenstrahlung mit Materie	7
		2.2.3 Wechselwirkungen von γ -Strahlung mit Materie	'n.
	2.3	Strahlungswirkung auf Polymere	12
		2.3.1 Schädigung von Polystyrol	14
		2.3.2 Schädigung von Polymethylmethacrylat	15
3	Ex	perimentelle Methoden 1	9
	3.1	Verfahren zur Schadensbestimmung	9
		3.1.1 Das Spektralphotometer	9
		3.1.2 Der Fahrtisch zur Fluoreszenzanregung	3
		3.1.3 Datennahme und -bearbeitung an den optischen Aufbauten	3
	3.2	Bestrahlungsquellen	5
		3.2.1 ⁶⁰ Co-Quelle am HMI	5
		3.2.2 Forschungsreaktor FRG-1 am GKSS	5
	3.3	Elektronenspinresonanz-Messungen	5
		3.3.1 Grundlagen der ESR	6
		3.3.2 Dosismessungen mit Alanin	9
		3.3.3 Eichung der Alanin-Dosismessung	0
4	Du	chgeführte Untersuchungen 4	5
	4.1	Einführung zu den Bestrahlungsexperimenten 4	5
		4.1.1 Bezeichnungen auftretender Bestrahlungseffekte	6
		4.1.2 Schadensbestimmung	7
	4.2	Strahlungsstabilität von Wellenlängenschiebern 4	8
		4.2.1 Dosisabhängigkeit und Strahlungsquellen	8
		4.2.2 Wellenlängenschieber mit verschiedenen UV-Absorbern 6	Ď
		4.2.3 Einfluß der Dosisleistung	7
	4.3	Strahlungsstabilität von Szintillatoren	i
		4.3.1 Dosisabhängigkeit und Strahlungsquellen	l
		4.3.2 Farbstoffzerstörung)

		4.3.3 Einfluß der Dos	isleistung								80
	4.4	Zusammenfassung der	Bestrahlungsex	perimente				• •	• • •		81
	4.5	Normierung von Fluore	szenzspektren	•						•	81
	4.6	Vergleichbarkeit Spekti	alphotometer -	Fahrtisch		•••		• •	• • •		85
		4.6.1 Vorteile der jew	eiligen Verfahre	n				• •	• • •		85
		4.6.2 Unterschiede in	den Meßverfah	ren		• • •		• •	• • •		87
		4.6.3 Näherungsweise	Umrechnung d	er Absorption	skoeffizi	enten		• •	• • •	•	27
	4.7	Numerische Simulation	der Lichtausbr	eitung in Oua	dern	CHCC H		• •	•••	•	80 80
		4.7.1 Verfahren zur B	estimmung der	Lichtabschwä	ichung .	•••		• •	· · ·		03 00
		4.7.2 Der Basisdatens	atz zur Simulai	ionsrechnung		•••		• •	• • •	•	30 0 1
		4.7.3 Ergebnisse der S	Simulationen	iono connung	• • • •	· · ·	•••	• •	• • •	•	34 00
		0				•••		•••	•••		99
5	Int	erpretation der Resul	ate für ZEUS	5						10	7
	5.1	Zum Aufbau des ZEUS	-Detektors							1	07
		5.1.1 Gesamtüberblich	.							1	07
		5.1.2 Das Kalorimeter						• •	• • •	1	ñ a
	5.2	Auswirkungen von Mat	erialschäden au	f das Kalorim	eter .			• •	• • •	1	12
		5.2.1 Szintillator						• •		1	12
		5.2.2 Wellenlängensch	ieber				• • •		• • •	1	21
		5.2.3 Gemeinsame Au	swirkungen .					• • •	•••	1	25
	5.3	Schlußfolgerungen								15	28
_		_									.0
Ζι	isam	menfassung								13	1
A	Erg	änzungen								13	3
	A .1	Fluoreszenzlichtausbeut	e und Farbstoff	konzentration						12	33
	A.2	Vergleichbarkeit von Tr	ansmissions- u	nd Fahrtischm	essung					13	14
	A.3	Simulation zur Lichtaus	breitung in Qu	adern						13	7
		A.3.1 Die Berechnung	der Lichtausbre	itung						13	17
		A.3.2 Das Programm	'quaderatten" r	nit Basisdater	ısätzen				•••	13	19
	A .4	Bestimmung der Appar	atefunktionen							. 14	6
R	Fahl	longochnung					• •		•••		
D	ren: R i	erreunnung Sachteelaketeelek								14	9
	D.1	opentralphotometer .								. 14	9

Kapitel 1

Einleitung

In gegenwärtigen und zukünftigen Experimenten der Teilchenphysik werden zahlreiche polymere Szintillatoren und Lichtleiter in Platten- oder Fasergeometrie verwendet. Sie bilden oft die erste Stufe bei der Umwandlung von Eigenschaften hochenergetischer Teilchen in apparativ meßbare, elektrische Signale. Beispielsweise dient die bei Durchgang hochenergetischer Teilchen enstehende Lichtintensität in Szintillatoren, die mit Photomultipliern gemessen wird, als Maß für die Teilchenenergie. Auch als möglichst verlustarmes Transportmedium für Licht werden Kunstoffe in der Teilchenphysik benutzt. Dabei werden hohe Anforderungen an die Materialien gestellt. Sie sollen über eine Zeitdauer von zehn Jahren und länger möglichst zuverlässig arbeiten und dabei gleichbleibende optische Eigenschaften aufweisen. Die Einhaltung dieser Forderung wird durch den an Teilchenbeschleunigern vorhandenen Strahlungsuntergrund bedeutend erschwert.

Ein Beispiel für ein Experiment der Teilchenphysik ist der ZEUS-Detektor am Elektronen-Protonen-Beschleuniger HERA des Deutschen Elektronen Synchrotrons (DESY) in Hamburg. Das hochgenaue Kalorimeter des Detektors ist einem geschätzten Strahlungsuntergrund von maximal etwa 300 Gy pro Jahr durch den Beschleunigerbetrieb ausgesetzt. In zehn Jahren summieren sich also etwa 3 kGy absorbierter Strahlungsdosis bei einer mittleren Dosisleistung von 0,04 Gy/h. Das Kalorimeter ist ein sogenanntes Sampling-Kalorimeter aus abwechselnden, einigen Millimeter dicken Lagen abgereichterten Urans und Szintillatormaterials. Das Szintillationslicht wird über Wellenlängenschieber zur Auslese an Photomultiplier geleitet. Das Kalorimeter wurde auf ein Prozent genau kalibriert und erreicht eine Energieauflösung (E in GeV, \oplus steht für quadratische Addition)

- für Elektronen von: $\sigma(E)/E = 18\%/\sqrt{E} \oplus 1\%$
- und für Hadronen von: $\sigma(E)/E = 35 \% / \sqrt{E} \oplus 2 \%$.

Sollen diese Eigenschaften auch nach 10 Jahren Meßbetrieb am Beschleuniger unverändert erhalten bleiben, so müssen die Materialien für den Detektor sorgfältig ausgewählt sein und einer ständigen Überwachung während der Betriebsdauer unterliegen. Methoden zur wiederholten Kontrolle der im Kalorimeter eingebauten Komponenten werden an anderer Stelle diskutiert [Kre92, Neu96].

In dieser Dissertation werden zunächst für den Detektorbau verwendete Stoffe vorgestellt, die auf Polystyrol (PS) und Polymethylmethacrylat (PMMA) basieren. Dabei wird auf grundlegende chemische Mechanismen der Schädigung durch Bestrahlung und ihre Folgen eingegangen. Im Rahmen dieser Arbeit sind mit dem Begriff Schädigung optisch meßbare Veränderungen in den untersuchten Stoffen aufgrund von Strahlungseinwirkung gemeint. Im nächsten Kapitel folgt die Vorstellung der Meßverfahren. Für Testbestrahlungen standen sowohl reine γ -Strahlung als auch schnelle und thermische Neutronen in einem Mischfeld mit γ -Strahlung zur Verfügung. Zu Zwecken der Dosimetrie wurde neben weiteren Dosimetern das den Testmaterialien chemisch verwandte Alanin eingesetzt, für das eine eigene Kalibration an dem verwendeten Elektronen-Spin-Resonanz Spektrometer erforderlich war.

2

Im folgenden Kapitel geben die Bestrahlungsexperimente an den untersuchten Materialien den Einfluß der verschiedenen Strahlungssorten auf die Höhe und Art der Schädigung wieder. Sowohl die bestrahlungsbedingte Erzeugung neuer Absorptionszentren als auch die Zerstörung vorhandener Zentren wie Farbstoffe oder UV-Absorber werden studiert. Eine wichtige Zielsetzung bei den Untersuchungen ist eine Übertragung der Ergebnisse auf Umgebungsbedingungen in realer Detektorumgebung. Hierbei stellt die lange Betriebsdauer der Detektoren eine prinzipielle Schwierigkeit dar. In Laborexperimenten müssen Ergebnisse in vergleichsweise kurzer Zeit erzielt werden, was die Extrapolation der gewonnenen Erkenntnisse notwendig macht. Aus diesem Grunde werden Testbestrahlungen mit wechselnden Dosisleistungen und in verschiedenen Atmosphären präsentiert. Betrachtungen an Stoffen mit unterschiedlichen Zusätzen zeigen deren Eignung für den Einsatz im Detektorbau.

Einen weiteren Unterschied zwischen Laboruntersuchungen und realem Detektor schaftt die Auswahl der Probengeometrien für Testbestrahlungen. Aufgrund der Vorgaben durch Bestrahlungsquellen und Untersuchungsverfahren sind kompakte Probenabmessungen erforderlich. Die untersuchten Materialplatten haben Dicken von einigen Millimetern und Seitenlängen von einigen Zentimetern bis zu einigen zehn Zentimetern. Bei gleicher Dicke erreichen z.B. Lichtleiter oder Wellenlängenschieber im Detektor zum Teil meterlange Abmessungen. Wellenlängenabhängige Lichtabschwächung in den Stoffen, die sich nach Bestrahlung ebenfalls wellenlängenabhängig ändern kann, macht eine direkte Übertragung von Erkenntnissen auf andere Probengeometrien schwierig. Zur Abhilfe wurde deshalb ein Simulationsprogramm entwickelt, das die Lichtausbreitung in quaderförmigen Geometrien wellenlängenabhängig berechnet und eine geometrieabhängige Umrechnung der Ergebnisse ermöglicht.

Im abschließenden Kapitel dieser Arbeit werden die in den Meßreihen gewonnenen Erkenntnisse auf das ZEUS-Kalorimeter übertragen und ihre Bedeutung für das Kalorimeter diskutiert.

Kapitel 2

Materialien und Mechanismen

2.1 Übersicht der verwendeten Materialien

Im Rahmen dieser Arbeit werden Materialien untersucht, die in gleicher oder ähnlicher Form im ZEUS-Kalorimeter verwendet werden. Dabei läßt sich eine Unterteilung anhand der chemischen Basis der Stoffe in zwei Gruppen vornehmen. Die auf Polystyrol basiernden Materialien werden im folgenden als Szintillatoren bezeichnet, weil das Basismaterial bereits ohne Zugabe weiterer Komponenten zu szintillieren vermag. Im Gegensatz dazu benötigen die auf PMMA basierenden Stoffe Beimischungen weiterer Stoffe, um szintillieren zu können. Ihnen werden oft fluoreszierende Farbstoffe beigemischt, die eine Wellenlängenverschiebung des einfallenden Lichtes zu größeren Wellenlängen bewirken. Aus diesem Grunde werden diese Materialien im folgenden als *Wellenlängenschieber* bezeichnet.

2.1.1 Szintillator

Tabelle 2.1: Brechungsindex von Acrylglas (PMMA) und Polystyrol (PS) als Funktion der Wellenlänge nach [Kuh75].

Wellenlänge (nm)	300	350	400	450	500	550	600	650
Прима	1,535	1,515	1,504	1,498	1,494	1,491	1,489	1,487
0.ps*	1,683	1,657	1,633	1,614	1,601	1,593	1,586	1,580

[•] Für T=20°C, $\Delta n_{PMDMA} \approx 1, 1 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ bei 10°C...100°C; Fehler: $\delta n = \pm 0.001$.

Der in dieser Arbeit betrachtete Szintillator wurde von der Firma Kuraray aus Japan (vormals Kyowa, Japan) in Platten von 2,6 mm Dicke hergestellt und heißt SCSN-38 [Kmn83]. Er basiert auf Polystyrol (PS, Strukturformel s. Abb. 2.1a) und enthält Beimischungen zweier wellenlängenschiebender Fluoreszenzfarbstoffe. Der erste Farbstoff ("1. Fluor") heißt b-PBD und ist mit 1 % beigemengt (Strukturformel s. Abb. 2.1b). Seine Aufgabe ist es, das von der Polystyrolmatrix erzeugte ultraviolette Szintillationslicht in längerwelliges UV-Licht zu überführen. Die hohe Konzentration des 1. Fluors von 1 % wurde gewählt, um eine möglichst hohe Signalausbeute bei großer Strahlungsstabilität (durch Überangebot an Farbstoffen) zu verwirklichen. Von Nachteil ist die daraus resultierende starke Selbstabsorption des Farbstoffs: (Kurzwellige) Anteile des Emissionslichtes werden vom Farbstoff zum Teil selbst wieder absorbiert, so daß eine starke Absorption des Emissionslichtes die Folge ist. Ein weiteres Problem ist das immer noch sehr kurzwellige Ausgangssignal, das nur schlecht mit gebräuchlichen und preiswerten Detektoren (Photomultipliern) ausgelesen werden kann. Um diese Nachteile einzuschränken, wird ein weiterer Farbstoff zugegeben. Dieser zweite Farbstoff ("2. Fluor") heißt BDB (Strukturformel s. Abb. 2.1c) und ist in einer Konzentration von 0,02% in Polystyrol gelöst. Er absorbiert das Emissionslicht des 1. Fluors und sendet seinerseits blaues Licht aus, welches schließlich den Szintillator verläßt, um vom Wellenlängenschieber absorbiert zu werden. Abbildung 2.2 zeigt die beschriebenen Emissions- und Absorptionsspektren. Der wellenlängenabhängige Brechungsindex von Polystyrol findet sich in Tabelle 2.1, weitere Eigenschaften von reinem Polystyrol sind:

Dichte
$$\rho = 1,06 \text{ g/cm}^3$$
,
Glastemperatur $T_g = 100 \,{}^\circ\text{C}$,
Massen-Energie-Absorptionskoeffizient $\frac{\mu_{en}}{\rho} \approx 0,025 \,\text{cm}^2/\text{g}$ bei 1 MeV γ -Quanten.



4



(a) Strukturformel von Polystyrol.

(b) Strukturformel des 1. Fluors b-PBD.



(c) Strukturformel des 2. Fluors BDB.

Abbildung 2.1: Strukturformeln der Bestandteile des Szintillators SCSN-38.

2.1.2 Wellenlängenschieber

Die in dieser Arbeit untersuchten Wellenlängenschieber sind — wie auch der Szintillator SCSN-38 — von der Firma Kuraray hergestellt worden. Es handelt sich bei dem im ZEUS-Kalorimeter



Abbildung 2.2: Emissions- und Absorptionsspektren von Polystyrol [Ber71], Absorptionsspektren von b-PBD und BDB [Kmn83], Emissionsspektren von b-PBD und BDB (eigene Messungen) sowie Emissions-und Absorptionsspektren des Wellenlängenschieberfarbstoffs Y7 (eigene Messungen).

verwendeten Stoff um ein auf Polymetylmethacrylat (PMMA, Strukturformel s. Abb. 2.3) basierendes Material.

Durch Zugabe von 30 ppm bzw. 45 ppm des Farbstoffs Y7 wird in dem Material eine Wellenlängenverschiebung einfallenden blauen Lichtes in grünes Licht ermöglicht (s. Abb. 2.2). Die chemische Zusammensetzung von Y7 ist unbekannt. Neben dem Fluoreszenzfarbstoff wurde dem Wellenlängenschieber ein unterhalb 360 nm absorbierender sogenannter Ultraviolettlichtabsorber (kurz UV-Absorber) beigemischt. Dieser unterdrückt unerwünschte



Abbildung 2.3: Strukturformel von Polymetylmethacrylat (PMMA).

kurzwellige Lichtanteile und schützt somit das PMMA-Basismaterial vor Schädigung. Die chemische Zusammensetzung dieses Absorbers sowie weiterer UV-Absorber, die ebenfalls in dieser Arbeit untersucht werden, ist ebenfalls unbekannt. Tabelle 2.1 stellt den Brechungsindex von reinem PMMA für einige Wellenlängen zusammen. Weitere Eigenschaften reinen PMMAs sind:

Dichte
$$\rho = 1, 19 \text{ g/cm}^3$$
,
Glastemperatur T_g = 105 °C,
Massen-Energie-Absorptionskoeffizient $\frac{\mu_{en}}{\rho} \approx 0,025 \text{ cm}^2/\text{g}$ bei 1 MeV γ -Quanten.

2.2 Strahlung und Materie

Ionisierende Strahlung läßt sich in zwei Kategorien einordnen:

- Direkt ionisierende Strahlung umfaßt elektrisch geladene Teilchen, die ihre Energie über Coulomb-Wechselwirkungen entlang ihrer Flugbahn in Materie abgeben. Dieses geschieht meist in Form einer Vielzahl kleinerer Wechselwirkungen.
- Indirekt ionisierende Strahlung beinhaltet ungeladene Teilchen wie γ -Quanten oder Neutronen. Solche Teilchen müssen ihre Energie zunächst an geladene Teilchen übergeben, bevor diese die Energie schließlich an die Materie weiterreichen. Im Gegensatz zu direkt ionisierender Strahlung kann die Energie dabei in vergleichsweise geringer Zahl von Wechselwirkungen in großen Portionen abgegeben werden.

Die vorliegende Arbeit befaßt sich mit Schädigungen an polymeren Kunststoffen, die hauptsächlich durch indirekt ionisierende Strahlung, namentlich γ - und Neutronenstrahlung, hervorgerufen werden.

2.2.1 Grundbegriffe

An dieser Stelle sollen der Vollständigkeit halber einige später verwendete Grundbegriffe der Strahlenphysik erläutert werden, die in einführenden Werken zu diesem Thema [Att86, Pet88] ausführlicher nachzulesen sind:

- Schwächung eines Teilchenstrahls (aus Photonen, Neutronen, etc.) ist die material- und energieabhängige Abnahme der Zahl der Teilchen durch Wechselwirkungen mit der umgebenden Materie (Absorption, Streuung, etc.). In der Literatur ist der zugehörige exponentielle Schwächungskoeffizient oft als Massenschwächungskoeffizient μ/ρ tabelliert. Er sollte nicht mit dem in dieser Arbeit leider ebenfalls als μ bzw. $\mu(\lambda)$ benannten optischen Absorptionskoeffizienten verwechselt werden.
- Energieumwandlung bezeichnet in einem Material die Überführung von Teilchenstrahlenergie in kinetische Energie im Material. Dabei müssen sowohl die Teilchenstrahlenergie als auch die kinetische Energie nicht komplett an die Materie übergeben werden. In der Literatur finden sich oft Tabellen von Massen-Energie-Transferkoeffizienten μ_{tr}/ρ .
- Energieabsorption stellt die vom Material absorbierte Energie des angebotenen Teilchenstrahls dar. Dies ist gleichbedeutend mit der Energieumwandlung abzüglich der Anteile kinetischer Energie, die das Material wieder verlassen (Beispiel: Im Material enstandene Röntgenbremsstrahlung, die selbiges verlassen kann). In der Literatur finden sich oft Tabellen von Massen-Energie-Absorptionskoeffizienten μ_{en}/ρ . Bis zu γ -Energien von einigen MeV ist der Unterschied zur Energieumwandlung in den in dieser Arbeit behandelten Materialien so gering, daß $\mu_{en}/\rho \approx \mu_{tr}/\rho$ in guter Näherung angenommen werden kann.
- Gleichgewicht geladener Sekundärteilchen (CPE): Wenn jedes geladene Teilchen, das ein Materievolumen der Größe V verläßt, durch ein gleichartiges Teilchen derselben Energie, welches in dieses Materialvolumen eintritt, ersetzt wird, spricht man vom Gleichgewicht geladener Sekundärteilchen (englisch: "Charged Particle Equilibrium" oder "CPE"). Diese Bedingung ist meist erfüllt, wenn die Stromdichte des Teilchenstrahls längs

5

der Abmessungen des Volumens V sich nicht merklich ändert (d.h. die Abmessungen von V müssen klein sein gegen die Halbwertsschichtdicke des Materials für die Strahlung) und wenn V vom gleichen Material in einer Schichtdicke umgeben wird, die von gleicher Größenordnung wie die Reichweite der Sekundärteilchen ist.

- G-Wert G(X) bzw. G(S): Diese G-Werte beschreiben die Zahl in einem Polymer stattfindender Kettenvernetzungen (G(X)) bzw. Kettenbrüche (G(S)) pro 100 eV $(=1,602\cdot10^{-17} \text{ J})$ absorbierter Strahlungsenergie.
- Linearer Energietransfer (LET): Der lineare Energietransfer wird abgeleitet aus der Definition des linearen Bremsvermögens. Letzteres ist für geladene Teilchen der kinetischen Energie E gleich dem mittleren Energieverlust ΔE , den das Teilchen entlang des Weges Δs erfährt ($\Delta E/\Delta s$). Beim LET werden dabei die Reaktionen übergangen, deren einzelne Energieüberträge größer als die mittlere Energieübertragung ist.
- **KERMA** steht für "Kinetic Energy Released in Material". Dies ist der Differentialquotient dE_k/dm aus der Summe der Anfangswerte der kinetischen Energien aller geladenen Teilchen dE_k , die von indirekt ionisierender Strahlung aus dem Material in einem Volumenelement dV freigesetzt werden, und der Masse des Volumenelements $dm = \rho \cdot dV$.
- Energiedosis (Dosis): Die Energiedosis oder kurz Dosis ist der Differentialquotient dE_{en}/dm aus der gesamten an ein Material übertragenen Energie dE_{en} in einem Volumenelement dVund der Masse des Volumenelements $dm = \rho \cdot dV$. Im Falle des Gleichgewichts geladener Sekundärteilchen (CPE) kann bei vergleichbaren Massen-Energie-Transferkoeffizienten und Massen-Energie-Absorptionskoeffizienten KERMA = Dosis angenommen werden.
- Energiedosisleistung (Dosisleistung): Die Energiedosisleistung oder kurz Dosisleistung ist die Ableitung der Dosis nach der Zeit.
- Integrierter Neutronenfluß: In der Literatur finden sich unterschiedliche Begriffe und Definitionen von Neutronenfluß, Fluence, Flux etc. Im Rahmen dieser Arbeit wird folgende Definition gebraucht: Die Zahl pro Flächeneinheit einfallender Neutronen (Flächendichte) wird als (über die Zeit 1) integrierter Neutronenfluß Φ bezeichnet (Einheit: [Φ] = cm⁻²).
- Neutronenfluß: Als Neutronenfluß $\dot{\Phi}$ wird entsprechend die Zahl pro Zeiteinheit und pro Flächeneinheit einfallender Neutronen bezeichnet (Einheit: $[\dot{\Phi}] = s^{-1} \text{ cm}^{-2}$). Die Wahl der Symbole Φ und $\dot{\Phi}$ lehnt sich dabei an die Definitionen von Dosis und Dosisleistung an.

2.2.2 Wechselwirkungen von Neutronenstrahlung mit Materie

In Bezug auf die später untersuchten Schädigungen an polymeren Kunststoffen erfolgt in diesem Abschnitt eine Spezialisierung auf solche Reaktionen, die in diesen Stoffen stattfinden können. Das umfaßt Reaktionen mit den chemischen Elementen H, O, C und N, die die wesentlichen Bausteine der untersuchten Materialien darstellen.

Neutronenstrahlung läßt sich nach der Teilchenenergie in drei wesentliche Klassen einordnen:

Thermische Neutronen besitzen Energien, die einer Maxwellverteilung um den wahrscheinlichsten Wert von 0,025 eV (bei Zimmertemperatur) gehorchen. Aus praktischexperimentellen Gründen werden meist Neutronen mit Energien kleiner 0,5 eV als thermische Neutronen bezeichnet. Bei diesen Neutronenenergien liefern γ-Quanten aus Neutroneneinfangsreaktionen den größten Beitrag zur deponierten Strahlungsdosis in den untersuchten Materialien.

- Epithermische Neutronen füllen die Definitionslücke zwischen thermischen und schnellen Neutronen. Sie haben somit Energien zwischen 0,5 eV und 10 keV.
- Schnelle Neutronen haben Energien von mehr als 10 keV. In diesem Energiebereich dominiert in den untersuchten Polymeren der Dosisbeitrag durch Rückstoßprotonen.

Abbildung 2.4 faßt die Beiträge der in einem kleinen Volumenelement biologischen Gewebes (in der chemischen Zusammensetzung vergleichbar mit den in dieser Arbeit untersuchten Polymeren) im freien Raum stattfindenden Neutronenreaktionen zum KERMA zusammen. Die Summe aller Beiträge (Kurve a) wird bei Neutronenenergien unterhalb etwa 100 eV dominiert von (n,p)-Reaktionen (Kurve g) an Stickstoff. Oberhalb 100 eV bestimmt elastische Streuung an Wasserstoffkernen (Kurve b) den Verlauf.

In reinem Material aus einem Element Z läßt sich die von monoenergetischen Neutronen (Energie E, integrierter Fluß Φ) mit einem Wechselwirkungstyp erzeugte KERMA berechnen:

$$K = \Phi \cdot (F_n)_{E,Z},\tag{2.1}$$

mit dem Neutronen-KERMA-Faktor

$$(F_n)_{E,Z} = 1,602 \cdot 10^{-10} \frac{g \, \text{Gy}}{\text{MeV}} \sigma \frac{N_t}{m} E_{\text{tr}}, \qquad (2.2)$$

$$= \left(\frac{\mu_{tr}}{\rho}\right)_{E,\mathbb{Z}} \cdot E_{tr} \tag{2.3}$$

mit

 σ : Wechselwirkungsquerschnitt,

$$\frac{N_t}{m}$$
 : Anzahl Targetatome pro Masseneinheit,

 E_{tr} : an geladene Teilchen übergebene kinetische

Gesamtenergie pro Wechselwirkung,

 $\left(\frac{\mu_{tr}}{\rho}\right)_{E,Z}$: Massen-Energie-Transferkoeffizient für Neutronen.

Im Falle des Gleichgewichtes geladener Sekundärteilchen ist die KERMA gleich der absorbierten Dosis. Konkrete Anwendungen der KERMA-und Dosisberechnung für Neutronen finden sich in Bemerkung 1 auf S. 53 und in Bemerkung 2 auf S. 77.

8



Abbildung 2.4: Auf den integrierten Neutronenfluß bezogene KERMA, hervorgerufen durch die aufgelisteten Wechselwirkungen in einem kleinen Masseteilchen biologischen Gewebes (vergleichbar mit Polymeren) im freien Raum als Funktion der einfallenden Neutronenenergie [Att86]. Die Kurven g und h sind um einen Faktor 10⁻³ nach unten verschoben.



Abbildung 2.5: Massenschwächungskoeffizient μ/ρ und Massen-Energie-Transferkoeffizient η/ρ für Wasser als Funktion der Photonenenergie. Gestrichelt sind die Einzelbeiträge der Massenschwächungskoeffizienten für Compton-Streuung (σ_c/ρ), Thomson-Streuung (σ_k/ρ), Photoeffekt (τ/ρ) und Paarbildung (κ/ρ) eingezeichnet [Pet88].

2.2. STRAHLUNG UND MATERIE

2.2.3 Wechselwirkungen von γ -Strahlung mit Materie

Es gibt eine Vielzahl möglicher Einzelreaktionen, die γ -Strahlung mit Materie eingehen kann. Die Art der Reaktion hängt ab von der γ -Energie und der Zusammensetzung der Materie, auf die die Strahlung einwirkt. Das Photon kann dabei mit verschiedenen Bereichen eines Materieatoms wechselwirken. Die Wechselwirkungen des Photons mit den Elektronen der Atomhülle sind:

- Thomson-Streuung: Hierbei handelt es sich um eine kohärente Streuung der Photonen. Zwar erfolgt durch die einfallende elektromagnetische Welle eine Anregung der Elektronenhülle, aber die aufgenommene Energie wird von ihr wieder vollständig in Form von γ -Quanten abgestrahlt. Damit scheint das einfallende Photon nur eine Richtungsänderung zu erfahren, bleibt aber von gleicher Energie. Im Energiebereich optischer elektromagnetischer Wellen ist dieser Effekt als Rayleigh-Streuung bekannt.
- Compton-Effekt: Hier findet eine Wechselwirkung des Photons mit nahezu freien Elektronen der Materie statt. Das einfallende γ -Quant wird unter Energieverlust in eine geänderte Flugrichtung gestreut und überträgt den verlorengegangenen Energiebetrag als kinetische Energie an das Elektron.
- Photoeffekt: Ist die Photonenenergie größer als die Bindungsenergie eines Elektrons der inneren Schale des Materieatoms, so kann unter vollständiger Absorption des γ -Quants dessen Energie das Elektron zum Verlassen des Atomes bringen. Die über den Betrag der Bindungsenergie hinausgehende Energie wird als kinetische Energie vom Elektron mitgeführt. Als Folge der Ionisierung der Materieatome erzeugen von äußeren Schalen nachrückende Elektronen charakteristische Röntgenwellenlängen, die nach außen abgestrahlt werden.

Des weiteren findet eine Art der Wechselwirkung im Coulombfeld des Atomkernes statt:

Paarbildung: Übersteigt die γ -Quantenenergie die doppelte Ruheenergie eines Elektrons (2 m_e c²), so kann im Coulombfeld des Atomkernes ein Teilchen-Antiteilchenpaar aus Positron und Elektron entstehen. Die über die zweifache Ruheenergie von Elektronen hinausgehende Photonenenergie wird als kinetische Energie auf beide Teilchen übertragen. Als Folge der anschließenden Vernichtung der entstandenen Positronen mit Materieelektronen entsteht wieder γ -Strahlung niedrigerer Energie von etwa 511 keV.

Schließlich tritt eine Wechselwirkung mit dem Atomkern auf:

Kernphotoeffekt: Bringt ein Photon mindestens die Bindungsenergie von Nukleonen im Atomkern (~10 MeV) mit, so kann der Kern zur Emission von Nukleonen angeregt werden.

Abbildung 2.5 zeigt die Energieabhängigkeit der Massenschwächungskoeffizienten am Beispiel von Wasser, das sich ähnlich wie die in dieser Arbeit untersuchten Polymere verhält. Die Darstellung macht deutlich, daß sich der Massen-Energie-Transferkoeffizient in weiten Energiebereichen vom Massenschwächungskoeffizienten unterscheidet, also nur ein Teil der angebotenen Photonenenergie auch im Material in kinetische Energie umgewandelt wird. Es läßt sich außerdem ablesen, daß in bestimmten Energiebereichen einzelne Wechselwirkungsarten dominieren. So bestimmt unterhalb etwa 30 keV der Photoeffekt den Schwächungskoeffizienten in Wasser, zwischen 30 keV und 20 MeV dominiert der Comptoneffekt und darüber die Paarbildung. Abbildung 2.6 zeigt die Photonenenergie, bei der die Beiträge von Photo- und Compton-Effekt bzw. Compton-Effekt und Paarbildung zur Schwächung gleich sind, für verschiedene Stoffe gegen die Ordnungszahl aufgetragen.



Abbildung 2.6: Energien gleich hoher Beiträge des Photo- und Compton-Effekts bzw. von Compton-Effekt und Paarbildung zur Schwächung in verschiedenen Stoffen gegen die Element-Ordnungszahl [Pet88].

2.3 Strahlungswirkung auf Polymere

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Strahlenwirkungen von γ -Strahlung auf Polymere sind in der Hauptsache Compton-Streuungen. Eine meist untergeordnete Rolle spielen auch Photoeffekt und Paarbildung. Das gilt auch für Einfangreaktionen thermischer Neutronen mit nachfolgender γ -Emission.

Die Folge aller Wechselwirkungsmechanismen im bestrahlten Material ist — bei ausreichender Strahlungsenergie — die Freisetzung eines energiereichen geladenen Teilchens, das in seiner Umgebung Ionisierung verursachen und somit weitere Elektronen freisetzen kann. Die von den entstandenen Ionen ausgehende Coulombwechselwirkung sorgt schnell für deren Rekombination mit Elektronen, so daß hochangeregte Molekülzustände die Folge sind. Letztere entstehen auch direkt bei Strahlungsenergien, die nicht zur Ionisierung ausreichen. Deshalb kann annähernd gesagt werden, daß die Stärke der verursachten Effekte — unabhängig von der Strahlungsart von der im Material deponierten Strahlungsenergie abhängt. Dabei sind allerdings LET-Effekte (Linearer-Energie-Transfer, s.o.) zu beachten. So verteilen z.B. von schnellen Neutronen ausgelöste Rückstoßprotonen mit sehr großem LET ihre Energie in — verglichen mit γ -Strahlung geringen LETs — sehr kleinen Volumina. Bei stärker lokalisierter Energiedeposition können Wechselwirkungen der entstandenen Reaktionsprodukte untereinander die Schadensausbeute, die sich z.B. in der Zahl entstandener Molekülbrüche äußert, relativ zu γ -Strahlung erhöhen (Beispiel Polystyrol [Hag83]) oder vermindern (Beispiel Alanin [Kat86]).

Die durch Strahlungseinwirkung erzeugten angeregten Moleküle bilden den Ausgangspunkt für vielfältige Folgereaktionen in Polymeren. Dabei dominieren in den untersuchten Polymeren die Bildung freier Radikale und daraus resultierende Reaktionen die makroskopisch feststellbaren Materialveränderungen. Die Lebensdauer der Radikale ist unterschiedlich. Sie hängt z.B.

11

von der Radikalgröße ab. Bei Kettenbrüchen in Polymeren können Seitenketten abgelöst werden, die im einfachsten Fall aus einem H-Atom bestehen, oder die Polymerhauptkette kann aufgetrennt werden. Die kleineren Fragmente können aufgrund ihrer höheren Beweglichkeit im Material wesentlich schneller Reaktionen mit anderen Stoffen eingehen. Dabei beeinflußt die Temperatur die Lebensdauer der Radikale stark, was sich in beschleunigten Ausheilprozessen der Strahlungsschäden bemerkbar machen kann [Bus92].

Einen großen Einfluß auf die durch Strahlung ausgelösten Materialreaktionen übt die Anwesenheit von Sauerstoff aus. So werden bei Sauerstoffanwesenheit während der Bestrahlung größere optisch sichtbare Schäden beobachtet als ohne Sauerstoffanwesenheit (s. z.B. Abschnitt 4.3.2, [Sir85]), andererseits hilft Sauerstoffanwesenheit nach der Bestrahlung, (optisch sichtbare) Strahlenschädigungen zurückzubilden [Bic91, Hol89a, Hol93, Wic89, Wic91]. In Zusammenhang mit Sauerstoffanwesenheit während der Bestrahlung spielt die Dosisleistung eine Rolle in Art und Zahl der entstehenden Schädigung. Je höher die Dosisleistung, desto weniger Sauerstoff kann von außen in das Material nachdiffundieren und dort stattfindende Prozesse beeinflussen.

Bei Bestrahlung anwesender Sauerstoff reagiert mit den durch Bestrahlung entstehenden freien Radikalen. Dabei kann man nach [Clo88] die folgenden grundlegenden Reaktionsmechanismen beschreiben:

Primärschritt:

$$R \xrightarrow{\gamma} R$$
 (2.4)

Übertragungsreaktionen

$$\mathbf{R} \cdot \xrightarrow{\mathbf{O}_2} \mathbf{RO}_2 \cdot$$
 (2.5)

$$RO_2 \rightarrow RO_2 H + R \rightarrow (2.6)$$

Kettenverzweigungen:

$$RO_2H \longrightarrow RO_1 + OH$$
 (2.7)

$$RO \cdot \xrightarrow{RH} ROH + R \cdot$$
 (2.8)

$$OH \xrightarrow{RH} H_2O + R \cdot$$
 (2.9)

Zerfall oder Vernetzung:

 RO_2H , RO_2 , $R \xrightarrow{RH}$ Prozesse, die zu Zerfall oder Vernetzung führen (2.10)

Abbruchreaktionen:

$$2 \operatorname{RO}_2 \longrightarrow \operatorname{RO}_2 \operatorname{R} + \operatorname{O}_2 \tag{2.11}$$

Sauerstoff ist aufgrund seiner Reaktivität bezüglich Radikalen und seiner hohen Beweglichkeit ein sehr effektiver Radikalfänger. Es finden deshalb viele Oxidationsprozesse statt, deren Folgeprodukte sich auch in den Ausgasungen bestrahlter Proben zeigen (CO, CO₂, H₂O). Eine Ursache für die in z.B. Abschnitt 4.3.2 oder [Sir85] berichteten Schadenszunahmen bei Sauerstoffanwesenheit während der Bestrahlung ist möglicherweise die vom Sauerstoff verschuldete starke Zunahme der Zahl von Radikalen. Diese ist auf die Übertragungsreaktionen (Gl. 2.5,2.6) zurückzuführen, die nach einer Peroxidbildung, zu der ein Radikal gebraucht wird, wieder ein Radikal freisetzen. Jedes Peroxid kann wiederum selbst Auslöser für die Bildung weiterer Radikale sein (Gl. 2.7,2.8,2.9). Weil der Peroxidzerfall (Gl. 2.7) thermisch ausgelöst wird, entsteht für diesen und seine Folgeprozesse eine Temperatur-Zeitabhängigkeit, die für beobachtete Dosisleistungseffekte, Temperatureffekte und Veränderungen (z.B. Ausheilen, s. Abschnitt 4.1.1) nach der Bestrahlung mit verantwortlich gemacht werden kann.

Polymere reagieren mit zwei grundlegenden strukturellen Änderungen auf Bestrahlung. Einerseits kommt es zu Kettenbrüchen (Symbol für die Zahl pro absorbierter Energieeinheit stattfindenden Brüche: G(S)), andererseits zu Vernetzungen (Symbol: G(X)) von Ketten. Dabei können schon Effekte, die beispielsweise nur eine von 30 000 CH₂-Einheiten eines Polymers betreffen, deutlich auf die makroskopischen Materialeigenschaften Einfluß nehmen [Clo88]. Man unterteilt Polymere nach dem dominierenden Beitrag der beiden Reaktionen oft in zwei Kategorien, die die Polymere als kettenbrechend oder vernetzend klassifizieren. Dabei gelten die Klassifizierungen für Bestrahlung in Sauerstoffabwesenheit.

Einen Überblick über die stattfindenden chemischen Reaktionen im vorwiegend vernetzenden Polystyrol und vorwiegend kettenbrechenden Polymethylmethacrylat geben z.B. [Clo88, Hag83, Maj92]. Aus diesen und weiteren Quellen werden die wichtigsten Erkenntnisse zur Chemie der Bestrahlungsfolgen nun kurz zusammengefaßt.

2.3.1 Schädigung von Polystyrol

Polystyrol ist aufgrund seines aromatischen Charakters — vergleicht man es etwa mit Polyethylen (PE), das anstelle des Phenylringes in PS ein H-Atom besitzt — relativ strahlungsbeständig. So zeigt PE etwa die fünfzigfache Zahl strahlungsbedingter Vernetzungen G(X), die bei PS zu beobachten sind [Clo88]. Polystyrol ist in der Lage, von außen einwirkende Energie auf die delokalisierten Elektronenbindungen des Phenylringes so zu verteilen, daß es in vielen Fällen nicht zu einem Bindungsbruch kommt.

Als wahrscheinlichste Auslöser für die nach Bestrahlung beobachtete Gelbfärbung [Maj92, Wic89] werden das tertiäre benzylische Wasserstoffatom und das binäre Wasserstoffatom im Polystyrol angesehen [Har69, Maj92]. Dieses sind die empfindlichsten Stellen für von außen angreifende Radikale.

Abbildung 2.7 zeigt, wie die Bildung von Farbzentren in Polystyrol möglicherweise abläuft [Maj92]. Die Ablösung des tertiären H-Atoms durch Einwirkung eines Radikals führt zur Bildung eines freien Polyenyl-Radikals. Mit steigender Anzahl entstandener Polyenyl-Radikale in einer Kette kommt es zur Bildung von immer längerwellig einsetzenden Absorptionen: Bei einem Radikal in einer Kette erstreckt sich die Absorption bis 260 nm, während bei fünf Radikalen pro Kette die Absorption bis etwa 400 nm reicht. Der beobachtete Rückgang der so erkärten Gelbfärbung nach Bestrahlungsende wird mit einer Rekombination der Polyenyl-Radikale in kurzkettige Polyene (letztes Teilbild der Abb. 2.7) erklärt. Sie absorbieren ebenfalls, allerdings erstreckt sich die Absorption zu vergleichsweise kürzeren Wellenlängen (bei eingliedrigem Polyen bis zu 185 nm, bei fünfgliedrigem bis zu 340 nm). Die Zeit bis zum Erreichen dieses Zustandes wird von Umgebungsbedingungen wie Viskosität der Polystyrolmatrix, Temperatur und besonders der Umgebungsatmosphäre bestimmt. So kann Sauerstoff im Gegensatz zu inerten Atmosphären wie Stickstoff oder Argon diesen Vorgang erheblich beeinflussen und beschleu-



Abbildung 2.7: Möglicher Reaktionsablauf zur Entstehung und Zurückbildung von Farbzentren in Polystyrol (nach [Maj92]).

nigen. Vergleichbare Reaktionsabläufe finden auch bei Ablösung eines binären H-Atoms der Polymerkette statt.

Diese Art der Reaktion dominiert die Schädigung in Polystyrol nach [Har69] bis zu einer Dosis von etwa 100 kGy, ab der Sättigung zu einer verlangsamten Entstehung dieses Radikals führen. Bei noch höheren Dosen dominiert danach die Bildung von Cyclohexadienyl-Radikalen, die durch Anlagerung eines H-Atoms an den Phenylring des Polystyrols entstehen. Für diese Radikalbildung wird eine Sättigung bei Dosen oberhalb 1,7 MGy beschrieben, ab der ein dritter Radikaltyp entstehen soll. Die Zahl entstehender Radikale wird von [Har69] in den Bereichen linearer Zunahme für die drei Radikalsorten pro 100 eV mit 0,085, 0,009 bzw. 0,001 angegeben.

Polystyrol erfährt bei Bestrahlung unter Sauerstoffabschluß vorwiegend Kettenvernetzung. Dabei ist G(X) für γ -Strahlung recht niedrig (0,04 pro 100 eV [Cal95, Clo88], während bei schnellen Neutronen, die einen deutlich höheren LET haben, ein ca. 6-fach höheres G(X) (0,24 pro 100 eV [Cal95, Hag83]) zu beobachten ist. Nach [Hag83] steigt bei Reaktionen mit hohem LET die Wahrscheinlichkeit, daß hochangeregte aromatische Ringe aufgrund "engerer Nachbarschaft" durch Kollisionen ihre Energie auf ebenfalls bereits angeregte Moleküle übertragen, welche dann zerfallen können und so die Radikalbildung erhöhen. Nach [Cal95] ist G(X) dabei nicht eindeutig abhängig vom LET, sondern wächst monoton mit der mittleren Energiedichte in einem Zylindervolumen um die Bahn des ionisierenden Teilchens.

Während für Polystyrol bei Sauerstoffabwesenheit die Zahl strahlungsbedingter Kettenvernetzungen die Zahl der Kettenbrüche deutlich übertrifft, ändert sich dieses Verhältnis bei Sauerstoffanwesenheit in Richtung einer erhöhten Zahl von Kettenbrüchen [Bow79]. Dabei hängt das Verhältnis G(S)/G(X) stark ab von der Probengeometrie, der Dosisleitung, der Temperatur und dem Sauerstoffpartialdruck. Bei Dosisleistungen von (1-40) kGy/h und Bestrahlung in Luft geben [Bow79] G(S)/G(X) = 1 für Plattengeometrie und G(S)/G(X) = 3,7 für Polystyrolpulver an. Ein Wert von G(S)/G(X) = 0, 10/0, 025 = 4 wird für eine etwa 0,15 mm dicke Oberflächenschicht der Platten angegeben. Optische Messungen zeigen für diese Randzone eine etwa 4-fach höhere Konzentration von durch Bestrahlung erzeugten zusätzlichen Absorptionszentren gegenüber der Probenmitte.

2.3.2 Schädigung von Polymethylmethacrylat

Polymethylmethacrylat ist deutlich empfindlicher gegenüber ionisierender Strahlung als Polystyrol und reagiert überwiegend mit Kettenbrüchen, wobei $G(S) \approx (1, 1 - 2, 6)$ pro 100 eV bei Bestrahlung in inerter Atmosphäre (Stickstoff) oder im Vakuum gemessen wird [Dav70]. Das recht große Werteintervall wird auf unterschiedliche Beimischungen in den jeweils untersuchten Materialien zurückgeführt.

Tabelle 2.2: Radiochemische	Ausbeute G der Bild	lung flüchtiger P	Produkte in i	РММА	bei Be-
strahlung mit 200 kGy ⁶⁰ Co γ	-Quanten einer Dosis:	leistung von 5 kG	ly/h bei 313 l	K nach [Dav70]

Produkt	Ausbeute G				
	(g pro 100g PMMA)	(relativ zur Summe aller Produkte)			
H ₂	0,27	0,07			
CH4	0,63	0,15			
CO	1,31	0,32			
CO_2	0,80	0,19			
HCOOCH3	0,76	0,18			
сн₃он	0,12	0,03			
СН3-О-СН3	0,12	0,03			
CH3COOCH3	0,03	0,01			
(CH ₃ O) ₂ CH ₂	0,08	0,02			

Im Gegensatz zu PS entstehen in PMMA bei Bestrahlung zahlreiche gasförmige Produkte, die aus der Materialoberfläche diffundieren. In [Dav70] wird die radiochemische Ausbeute der gasförmigen Produkte einer 200 kGy Bestrahlung von PMMA bei 313 K angegeben (Tabelle 2.2) und eine mögliche Erklärung der chemischen Vorgänge (s. Abb. 2.8) entwickelt. Hierin werden durch Bestrahlung (Compton-Effekt) erzeugte Kationen als Auslöser der Abspaltung der Ester-Grupppe (COOCH₃) angesehen, die ihrerseits in gasförmige Produkte zerfällt [Tod60].

Dabei wird die Abtrennung der Ester-Gruppe als ein Schritt gesehen, der dem Kettenbruch des PMMA-Moleküls vorausgeht und diesen auslöst. Die von [Dav70] gemachten Untersuchungen verbessern in diesem Punkt Modelle von [Tod60], die umgekehrt den Hauptkettenbruch als auslösende Reaktion sieht. Mit wachsender Zahl bereits erzeugter Hauptkettenbrüche sehen [Leh90] eine steigende Rate von Rekombinationen benachbarter Endgruppen und somit einen Polymerisationseffekt durch C=C Rekombinationen. Dieser führt laut [Leh90] zu einer Abnahme der zu Bestrahlungsbeginn hohen Gasproduktion.



Abbildung 2.8: Möglicher Reaktionsablauf in bestrahltem PMMA nach [Dav70].

im ZEUS-Kalorimeter verwendeten Wellenlängenschiebermaterials.

Kapitel 3

Experimentelle Methoden

3.1 Verfahren zur Schadensbestimmung

Beim Einsatz polymerer Szintillatoren, Wellenlängenschieber und Lichtleiter in Experimenten der Elementarteilchenphysik sind die optischen Eigenschaften der Materialien von großer Bedeutung. Deshalb liegen die Schwerpunkte der beschriebenen Verfahren zur Bestimmung der Materialcharakteristika in optischen Meßmethoden.

Grundsätzlich werden die Eigenschaften aller Proben vor und nach einer Bestrahlung verglichen. Mit Hilfe unbestrahlt belassener Referenzproben können daraus quantitative Angaben zur Materialschädigung gewonnen werden. Die hier wichtigste Form der Schädigung stellen dabei Veränderungen der optischen Materialeigenschaften dar. Mit ihnen kann deren Bedeutung für die in der Teilchenphysik verwendeten Meßgeräte und deren Spezifikationen abgeschätzt werden.

Es werden in den folgenden Abschnitten die verwendeten Meßapparaturen vorgestellt und ihre jeweilige Bedeutung für die Schadensbestimmung nach einer Bestrahlung der zu untersuchenden Stoffe erläutert.

3.1.1 Das Spektralphotometer

Technischer Aufbau

Zu Transmissionsmessungen stehen zwei Spektralphotometer sehr ähnlichen Aufbaus der Firma Beckman zur Verfügung. Das UV 5270 und sein Modellvorläufer ACTA V sind im Wellenlängenbereich 180...800 nm einsetzbar und verfügen über Doppelmonochromator und Doppelstrahlengang (Abbildung 3.1). Im Unterschied zum UV 5270 mit manueller Wellenlängeneinstellung, das über eine LED Anzeige ablesbar ist, wurde das ACTA V mit Schrittmotoren und Ausleseelektronik versehen. Somit ist hier eine vollautomatische Datennahme mit einem Personal Computer möglich.

Als Lichtquellen der Photometer dienen eine Wolfram- (800 nm - 350 nm) und eine Deuteriumlampe (500 nm - 180 nm), die mittels Klappspiegel in den Strahlengang gebracht werden können. Ein nachfolgender Doppelmonochromator mit stufenloser Spaltwahl selektiert Wellenlänge und Bandbreite des Lichtes. Dieses wird nachfolgend in zwei gleichartige Strahlengänge geteilt, abwechselnd nach Shuttertrennung durch den Probenraum geleitet und schließlich wieder auf einen Photomultiplier vereinigt. In einem der zwei Strahlengänge befindet sich das zu vermessende Probenstück, dessen Transmission durch Vergleich mit dem Referenzstrahl ermittelt werden kann. Abbildung 3.2 zeigt eine typische Messung der Transmission am Beispiel des



Abbildung 3.1: Schemazeichnung des Spektralphotometers ACTA V

Zur Bestimmung der wellenlängenabhängigen Probentransmission $T(\lambda)$ müssen Nullsignal des Gerätes I_0 (d.i. Dunkelstrom des Photomultipliers, Untergrund des Analog-Digital-Konverters) und ein Normierungsfaktor $K_{norm}(\lambda)$, der aus einer sogenannten 100%-Messung (keine Probe im Strahl) gewonnen werden kann, bekannt sein. Es gilt dann

$$T(\lambda) = \frac{I_{probe}(\lambda) - I_0}{I_{referenz}(\lambda) - I_0} \cdot K_{norm}(\lambda); \qquad (3.1)$$

$$\begin{split} K_{norm}(\lambda) &= \frac{I_{referens, 100\%}(\lambda) - I_0}{I_{probe, 100\%}(\lambda) - I_0}, \\ I_{probe}(\lambda) &: \text{Gemessene Probenstrahlintensität,} \\ I_{referens}(\lambda) &: \text{Gemessene Referenzstrahlintensität,} \\ I_{\dots, 100\%}(\lambda) &: \text{Intensitäten bei Messung ohne Probe im Strahlengang.} \end{split}$$

Messungen

Die Messung der Transmissionen im Spektralphotometer, wie in Gleichung 3.1 angegeben, läßt sich definieren als Verhältnis der Lichtintensitäten vor und hinter der Probe. Dabei beinhaltet der gemessene Transmissionswert zum einen die Absorption im Probeninneren, zum anderen die Reflexionen an den optischen Grenzflächen Luft-Probe und Probe-Luft. Somit gilt

$$T(\lambda) = T_0(\lambda) \cdot e^{-\mu(\lambda) \cdot d}.$$
(3.2)

Hier sind λ die Wellenlänge des Lichtes, $\mu(\lambda)$ der wellenlängenabhängige exponentielle Absorptionskoeffizient ($\mu = (\lambda_{esp})^{-1}; \lambda_{esp}$: exponentielle Abschwächlänge), und d die Dicke der

21



Abbildung 3.2: Wellenlängenabhängigkeit der Transmission einer untersuchten Probe (PMMA mit 30 ppm Y7 und 360 nm UV-Absorber, 2 mm dick).

Probe. $T_0(\lambda)$ ist die Transmission einer ideal klaren Probe ohne Absorption. Diese an den optischen Grenzflächen reflektierten Anteile hängen ab vom Brechungsindex des Materials und sind damit auch wellenlängenabhängig. Für senkrechten Lichteinfall gilt mit $n(\lambda)$ als wellenlängenabhängigem Materialbrechungsindex unter Berücksichtigung von Mehrfachreflexionen an den optischen Grenzflächen (vgl. [Bus92], S. 9f):

$$T_0(\lambda) = \frac{1 - \left(\frac{n(\lambda) - 1}{n(\lambda) + 1}\right)^2}{1 + \left(\frac{n(\lambda) - 1}{n(\lambda) + 1}\right)^2}.$$
(3.3)

Abbildung 3.3 zeigt $T_0(\lambda)$ für eine quaderförmige Probe aus PMMA bei senkrechtem Lichteinfall. Die Transmission wurde berechnet aus einer Polynomanpassung an die in Tabelle 2.1 aufgeführten wellenlängenabhängigen Brechungsindizes. Die zugrundeliegenden Messungen des Brechungsindex stammen aus [Kuh75].

Um ein Maß für die optischen Eigenschaften der untersuchten Materialien mit einer Möglichkeit zur Bewertung der Strahlungsschäden zu erhalten, erfolgt eine Berechnung des exponentiellen Absorptionskoeffizienten $\mu(\lambda)$ aus den gemessenen Transmissionseigenschaften. Diese so bestimmte Größe ist weitgehend geometrieunabhängig und erlaubt damit den Vergleich mit andersartigen Messungen (s. auch folgende Abschnitte).

Unterschiede im $\mu(\lambda)$ an einer Probe z.B. vor und nach deren Bestrahlung dienen als Kriterium zur Bewertung des optischen Strahlenschadens. Seien $\mu_b(\lambda)$ der Absorptionskoeffizient des bestrahlten Stoffes, $\mu_u(\lambda)$ der des unbestrahlten, so definiert



Abbildung 3.3: Wellenlängenabhängigkeit der Transmission einer ideal klaren PMMA-Platte (planparallel) bei senkrechtem Lichteinfall.

$$\Delta\mu(\lambda) = \mu_{\mathbf{b}}(\lambda) - \mu_{\mathbf{u}}(\lambda) \tag{3.4}$$

das im folgenden benutzte Maß für den Strahlenschaden. Die Größe $\Delta \mu(\lambda)$ ist proportional der durch die Strahlung im Material erzeugten Absorptionszentren. Vergleiche mit Elektronenspinresonanzmessungen und Gasanalysen zeigen zudem Parallelen mit der im Material entstandenen Radikalkonzentration (siehe auch Kapitel 2).

Gleichung 3.4 läßt sich mit Hilfe der Ausdrücke in den Gleichungen 3.2 und 3.3 unter der Voraussetzung gleicher Brechungsindizes $n(\lambda)$ schreiben als

$$\Delta\mu(\lambda) = \frac{1}{d_{\bullet}} \cdot \ln\left(\frac{T_{\bullet}(\lambda)}{T_{\bullet}(\lambda)}\right) - \frac{1}{d_{u}} \cdot \ln\left(\frac{T_{\bullet}(\lambda)}{T_{u}(\lambda)}\right).$$
(3.5)

lst die Probendicke bei beiden Messungen identisch $(d = d_b = d_u)$, also z.B. bei Messungen vor und nach Bestrahlung am selben Stück, so vereinfacht sich 3.5 zu

$$\Delta \mu(\lambda) = \frac{1}{d} \cdot (\ln(T_u(\lambda)) - \ln(T_b(\lambda))). \tag{3.6}$$

Ein Verfahren, das längere Lichttransportwege in den Proben zur Messung ausnutzt und besonders zur Messung großer Abschwächlängen geeignet ist, beschreibt der folgende Abschnitt.

3.1. VERFAHREN ZUR SCHADENSBESTIMMUNG

3.1.2 Der Fahrtisch zur Fluoreszenzanregung

Technischer Aufbau

Zur Messung der Fluoreszenzlichtanregung steht ein Fahrtisch zur Verfügung, der eine ortsabhängige Anregung der Probenstücke mittels beweglicher Lichtquelle erlaubt. Hier dient eine Xenon-Hochdrucklampe (Typ Hamamatsu L 2175) als Quelle, deren Licht für die Probenanregung über flexible Quarzfasern zur Probenoberfläche geleitet wird ("Probenstrahl"). Ein zweiter Lampenausgang erlaubt den Ausgleich eventueller Lampenintensitätsschwankungen bzw. Änderungen der Detektorempfindlichkeit. Von hier wird das Lampenlicht ebenfalls mit Quarzfasern direkt zum Detektor geleitet ("Referenzstrahlengang"). Eine bewegliche Shutterscheibe gibt abwechselnd den jeweils gewünschten Strahlengang frei. Filter am Lampengehäuse bieten die Möglichkeit, jeweils interessante Spektralbereiche aus dem Xenon-Lampenspektrum auszuwählen und Intensitätsanpassungen, z.B. zwischen Proben- und Referenzstrahlengang, vorzunehmen.



Abbildung 3.4a: Spektrale Abhängigkeit der normierten Transmission der Filterkombination "BW403 + ND2x" zur Anregung des zweiten Farbstoffs (BDB) in SCSN-38.

Abbildung 3.4b: Spektrale Abhängigkeit der normierten Transmission der Filterkombination "BW480 + ND2x" zur Anregung des Wellenlängenschieberfarbstoffs Y7 in PM-MA.

Die Transmissionsspektren zweier häufig benutzter Filterkombinationen sind in den Abbildungen 3.4a und 3.4b dargestellt. Die Auswahl erfolgte mit dem Ziel, möglichst realitätsnahe Spektren zu schaffen. So ist der Durchlaßbereich der Filter in Abbildung 3.4a etwa dem Emissionsspektrum des ersten Farbstoffs in SCSN-38 (b-PBD) nachempfunden, um gezielt den zweiten Fluor (BDB) anzuregen. Dessen Emissionsspektrum kommt der Transmissionsbereich der Filterkombination in der Abbildung 3.4b sehr nahe, der zur Anregung aller mit dem Farbstoff Y7 dotierten Materialien dient. Zum Vergleich mit den Filterspektren sind in den Abbildungen 3.5a und b die gemessenen Emissionspektren beider Farbstoffe gezeigt.

Der Meßtisch besteht aus einer ca. 120 cm langen und ca. 60 cm breiten Grundplatte, auf der

24

23





Abbildung 3.5a: Emissionsspektrum des 1. Farbstoffs (b-PBD) in SCSN-38. Aus Messung mit Monochromator bei streifender Anregung mit anschließender Korrektur durch Apparatefunktion (vgl. Abb. 4.16 und Abschn. 4.5).

Abbildung 3 5b: Emissionsspektrum des 2. Farbstoffs (BDB) in SCSN-38 (Messung und Korrektur wie nebenstehend).

Probenstücke entsprechender Größe positioniert werden können. Drei an dieser Platte fixierte Fahrachsen bewegen einen Transportkopf, der die Quarzfaser zur Lichtanregung hält. Dabei sind zwei Achsen entlang der Grundplatte verschiebbar (Fahrwege 80 cm bzw. 40 cm), die dritte dient der Höhenverstellung senkrecht zur Ebene der beiden anderen (Fahrweg 20 cm). Die Positioniergenauigkeit der Fahrachsen beträgt 0,01 mm, wird aber in der Praxis aufgrund der ungenaueren Probenhalterung auf etwa 0,1 mm relative Einstellbarkeit des Anregungsstrahls zur Probe reduziert.

Mit diesem Aufbau ist eine ortsabhängige Fluoreszenzanregung in Probenstücken möglich. Das entstehende Fluoreszenzlicht wird an einer Probenkante über eine Mattscheibe auf einen Lichtleiter aus PMMA gegeben, der einen Photomultiplier (zur Verfügung stehen die Typen XP2011 und XP1911 der Firma Valvo oder Typ R580 der Firma Hamamatsu) beleuchtet. Wahlweise kann zwischen Lichtleiter und Photomultiplier ein Monochromator (Typ HR250 der Firma ISA/Jobin Ivon) zur spektralen Analyse des Fluoreszenzlichtes in den Strahlengang integriert werden.

Die Mattscheibe im Strahlengang unterdrückt vom Anregungsort abhängige Intensitätsänderungen, die auf geometrische Effekte der Lichtausbreitung und -reflexion in der Probe zurückzuführen sind. Weil der Aufbau, insbesondere mit Monochromator, nur eine begrenzte Winkelverteilung des Fluoreszenzlichtes akzeptiert, kann es ohne Mattscheibe zu einer Intensitätsmessung kommen, die stark von der Winkelverteilung des Fluoreszenzlichtes an der aus-

zulesenden Probenkante bestimmt wird. Um diese Änderung der Winkelverteilung nicht als Intensitätsänderung zu registrieren, wird einfallendes Fluoreszenzlicht durch die Mattscheibe statistisch gestreut, eine vorhandene Winkelverteilung also aufgehoben.



Abbildung 3.6: Schemazeichnung des Meßtischaufbaus

Die Signalauslese des Photomultipliers erfolgt über einen 12-Bit Analog-Digital-Wandler (XYCOM XVME-500/3) in VME-Bus Umgebung. Ein VME-Bus Computer auf OS-9 Betriebssystembasis steuert Datenauslese und Schrittmotoren über Interfaceeinheiten [Kam89]. Alle beweglichen Teile des Aufbaus, drei Fahrtischachsen, Shutterscheibe im Lampengehäuse und Monochromatorgitter zur Wellenlängenverstellung, werden mit fünf Schrittmotoren (Typen 3450 und 3455) der Firma Isert kontrolliert.

Fahrtischmessungen

In diesem Abschnitt wird die Bedeutung der Messungen am Fahrtisch ohne Monochromator diskutiert. Zur Unterscheidung dieser Messungen von Monochromatormessungen wird im folgenden häufiger von "integraler" Tischmessung die Rede sein.

Dieser Aufbau ist geeignet, den Ablauf und die Geometrie der Szintillationslichtanregung in Sandwich-Kalorimetern mit Wellenlängenschieberauslese nachzuahmen. So lassen sich beispielsweise Wellenlängenschieberstücke mit dem passenden Spektrum zur Fluoreszenz anregen und dabei das Abschwächverhalten dieses Lichtes in Abhängigkeit vom Anregungsort sowie die Fluoreszenzlichtausbeute vermessen.

Abbildung 3.7 zeigt eine typische Messung dieser Art an einer Wellenlängenschieberprobe (dasselbe Stück wie in Abb. 3.2). Die Entstehung der Kurvenform wird deutlich an der über



Abbildung 3.7: Abschwächverhalten des Fluoreszenzlichtes an Wellenlängenschieberprobe.

der Meßkurve gezeichneten Skizze des Meßvorganges: Der Lichtleiter mit dem Anregungsspektrum fährt über die Probenoberfläche hinweg. Es kommt zur Fluoreszenzlichtanregung, sobald der Lichtleiter (Querschnitt kreisförmig, Durchmesser 3 mm) über der Probe seinen Lichtfleck (kreisförmig, ca. 5 mm Durchmesser) auf das dem Photomultiplier abgewandte Probenende wirft. Mit Annäherung an das dem Photomultiplier zugewandte Probenende nimmt die gemessene Fluoreszenzintensität monoton zu. Die Koordinate X als Abszisse der Meßkurve im unteren Teil der Abbildung 3.7 kennzeichnet den Probenort in mm, wobei der Nullpunkt das dem Photomultiplier zugewandte Ende darstellt.

Die Stärke des Intensitätsabfalls mit steigendem X richtet sich nach der Absorption des Fluoreszenzlichtes im Probeninneren und nach geometrischen Gegebenheiten wie der Probenform, möglichen Reflexionen an den Grenzflächen usw. Bei den vergleichenden Betrachtungen bestrahlten und unbestrahlten Materials sind in diesem Zusammenhang besonders die Änderungen der Absorptionseigenschaften wichtig, während bei den anderen genannten Punkten im Rahmen der Meßgenauigkeit von einer Erhaltung dieser Größen auch nach Bestrahlung ausgegangen werden kann.

Um eine Quantifizierung der Schadensbildung im Material zu ermöglichen, werden alle Probenstücke sowohl vor als auch nach Bestrahlung am Fahrtisch vermessen. Die so erhaltenen Abschwächkurven setzen sich zusammen aus den Intensitätsanteilen der verschiedenen Wellenlängen des Fluoreszenzlichtes. Da die Lichtabschwächung im Probenmaterial wellenlängenabhängig ist, ensteht daraus eine ortsabhängige Intensitätsverteilung der Fluoreszenz, d.h.

die Zusammensetzung des ausgelesenen Spektrums hängt ab von der Entfernung des Anregungsortes zur Auslesekante. Das führt schließlich zu einer mittleren ebenfalls ortsabhängigen Abschwächung bei Messung des Gesamtspektrums ohne Monochromator. Somit stellt der in Abbildung 3.7 gezeigte Intensitätsverlauf keine exponentielle Abschwächung dar, sondern zeigt vielmehr eine Überlagerung aus den exponentiellen Abfällen der jeweiligen Wellenlängenanteile des Fluoreszenzlichtes.

Zu einer weiteren Verfälschung des exponentiellen Abfalls tragen geometrische Effekte der Probenstücke bei. So nehmen z.B. die unterschiedlichen Lichtweglängen, verursacht durch Mehrfachreflexionen an den seitlichen Probenflächen und Reflexionen an der Probenendfläche gegenüber der Auslesefläche, Einfluß auf den Kurvenverlauf. Auch Abweichungen von der ideal quaderförmigen Probengeometrie, also z.B. eine leichte Keilform der Probe, sind Ursache nichtexponentiellen Kurvenverlaufs.

Trotz dieser Effekte hat sich gezeigt, daß in bestimmten Probenbereichen eine exponentielle Anpassung der integral gemessenen Intensitätsverläufe unter Berücksichtigung reflektierter Anteile von der Probenendfläche ein gut geeignetes Mittel zur Bewertung und zum Vergleich der durch Strahlung verursachten optischen Materialveränderungen ist. Voraussetzung für eine solche Bewertung durch Kurvenanpassung ist die Kenntnis des an der Probenendkante reflektierten Fluoreszenzlichtanteiles.

Mit bekannter Reflexion am offenen Ende der Probe kann die folgende Anpassung gewählt werden:

$$I(x) = \frac{I(x=0)}{1+R \cdot e^{-2\overline{\mu}L}} \cdot \left(e^{-\overline{\mu} \cdot x} + R \cdot e^{-\overline{\mu} \cdot (2L-x)}\right); \qquad (3.7)$$

I(x) : bei Anregung am Ort x gemessene Fluoreszenzintensität.

x : Abstand des Anregungsortes von der Auslesekante

 $\overline{\mu}$: mittlerer exponentieller Absorptionskoeffizient,

R = 0.15, Reflexionskoeffizient am offenen Probenende,

L : Probenlänge.

Der mittlere Absorptionskoeffizient $\overline{\mu}$ wird für die Schadensmessung benötigt. Im Gegensatz zum monochromatischen Absorptionskoeffizienten $\mu(\lambda)$ des Spektralphotometers ist die hier benutzte Größe $\overline{\mu}$ kein Absorptionskoeffizient eines exponentiellen Abschwächverhaltens im Material. Sie repräsentiert vielmehr einen Effektivwert aufgrund der Überlagerung verschiedener spektraler Absorptionskoeffizienten und der unterschiedlichen Längen zurückgelegter Lichtwege bei Anregung an einem bestimmten Probenort. Ähnlich wie im Falle der Transmissionsmessungen beschreibt auch hier die Differenz der Absorptionskoeffizienten vor und nach Bestrahlung, $\Delta \overline{\mu}$, die optischen Auswirkungen der Bestrahlung:

$$\Delta \overline{\mu} = \overline{\mu}_{\rm b} - \overline{\mu}_{\rm b} \tag{3.8}$$

Die Anpassung der Gleichung 3.7 an die experimentelle Meßkurve erfolgt in einem ca. 100 mm langen Bereich der Probenmitte, im Falle 250 mm langer Stücke z.B. von x = 90 mm bis x = 230 mm. Dieser Bereich ist gut geeignet, da die spektrale exponentielle Abschwächung sich hier nur schwach verändert, wie Messungen mit dem Monochromator im folgenden Abschnitt zeigen. Somit stimmt $\overline{\mu}$ recht gut mit einem exponentiellen Abschwächkoeffizienten überein. Der Reflexionskoeffizient R. An dieser Stelle soll kurz die experimentelle Bestimmung des Reflexionskoeffizienten am offenen Probenende R bzw. $R(\lambda)$ erläutert werden. Die hier gezeigten Messungen wurden mit Monochromator im Strahlengang aufgenommen, so daß eine wellenlängenabhängige Messung der Fluoreszenzlichtintensitäten möglich war.

Es wurden Probenstücke der häufig verwendeten Abmessung $2 \times 40 \times 250$ mm³ aus dem ZEUS- Wellenlängenschieber- bzw. 2.6 \times 40 \times 200 mm³ aus dem ZEUS- Szintillatormaterial verwendet. Jede Probe wurde auf dem Meßtisch jeweils zweimal mit Monochromator im Strahlengang vermessen. Diese Messungen erfolgten mit offenem Probenende bzw. mit Aluminium-Abschluß an der Probenendfläche, wobei die Aluminiumreflektoren mit optischem Fett an die Probe angekoppelt waren.

(x = L; L = 250 mm bzw. L = 200 mm, vgl. Abb. 3.7). Der Vergleich der gemessenen Intensitäten an der Probenendfläche mit offenem Ende und Aluminiumreflektor führt hierbei auf den Reflexionskoeffizienten am offenen Ende, wenn die Aluminiumreflektivität bekannt ist $(R_{Aluminium} = 0.89 \pm 0.01 \text{ im Spektralbereich } 350-650 \text{ nm nach [Koh68]})$. Diese Überlegung ergibt sich z.B. aus Gleichung 3.7 für gemessene Intensitäten $I(x, \lambda)$ am Orte der Probenendfläche:

$$R(\lambda)_{\text{offen}} = \frac{I(x = L, \lambda)_{\text{offen}} \cdot (1 + R_{\text{Aluminium}})}{I(x = L, \lambda)_{\text{Aluminium}}} - 1$$
(3.9)

Durch Geradenanpassung an die Abschwächkurven im Bereich 2 cm vor der Probenendfläche und Extrapolation auf x = L konnten für 4 nm breite Spektralbereiche — diese waren im Abstand von 3 nm auf das Emissionsspektrum verteilt — die Intensitätswerte ermittelt und daraus die Reflexionskoeffizienten berechnet werden. Fehler in der Bestimmung der Reflektivitäten der verschiedenen Proben sind zurückzuführen auf die Unsicherheit der optischen Ankopplung der Aluminiumreflektoren an die unterschiedlich beschaffenen optischen Endflächen jeder Probe. Hiermit sind z B. Oberflächenqualität und Schräge der Endfläche sowie eine mögliche konische Probengeometrie gemeint. Verschiedene Messungen an bestrahlten wie unbestrahlten Probenstücken ergeben, daß bei sowohl PMMA- wie auch PS-Basismaterialien (Polystyrol) eine mittlere wellenlängenunabhängige Reflektivität von

$$R = 0.15 \pm 0.02 \tag{3.10}$$

angesetzt werden kann. Dies gilt ebenso für die Messung ohne Monochromator.

Der beschriebene Aufbau ist geeignet, die Arbeitsbedingungen in einem Sandwichkalorimeter zu simulieren. Insbesondere die Lichtauslese mit einem Photomultiplier, der gewichtet mit der eigenen spektralen Empfindlichkeit das gesamte Fluoreszenzspektrum mittelt, kann sehr genau realen Einsatzbedingungen angepaßt werden. Somit wird eine Abschätzung der im Kalorimeter zu erwartenden Effekte bei Bestrahlung möglich. Über eine Zuordnung im Kalorimeter meßbarer Störungen (wie z.B. Signalausbeute, Linearität, Energieauflösung, ...) zu den verursachenden optischen Materialänderungen kann eine Bewertung der Materialeignung vorgenommen werden. Orientiert an solchen Werten lassen sich Vergleiche der "Strahlungshärten" unterschiedlicher Stoffe diskutieren.

Unzureichend ist dieser Aufbau allerdings, wenn allein aus seinen Messungen relativ kleiner Probenstücke, wie sie Testbestrahlungen an recht begrenzten Bestrahlungsquellen erzwingen, auf sehr viel größere Materialstücke extrapoliert werden soll. Ebenfalls nur begrenzt verwendbar sind die angepaßten Größen, wenn es darum geht, wirkliche Materialeigenschaften wie Abschwächlängen oder Auswirkungen der Strahlung auf die spektrale Zusammensetzung des Fluo-

Intensital

200

0

a 40

80



Abbildung 3.8: Abschwächung des Fluoreszenzlichtes bei Messung mit Monochromator.

500

520 ^{540 560 580}

600

velienlänge (nm.

reszenzlichtes zu bestimmen. Die Erweiterung des Aufbaus um einen Monochromator schafft in diesen Punkten Abhilfe und wird darum im folgenden Abschnitt erläutert.

Fahrtischmessungen mit Monochromatoreinsatz

120 160 200

Probonart (mm)

Wird zusätzlich zum eben beschriebenen Aufbau zwischen Mattscheibe und Photomultiplier ein Monochromator in den Strahlengang integriert (s. Abb. 3.6), so können weitergehende Aussagen bezüglich der Materialeigenschaften gemacht werden. Mit dem Monochromator kann das zu messende Wellenlängenintervall soweit eingeengt werden, daß der resultierende Intensitätsverlauf von sich nur gering unterscheiden den Absorptionskoeffizienten bestimmt wird. Außerdem beeinflussen dann noch geometriebedingte Oberflächeneffekte an den Probenbegrenzungen wie Reflexionen an Seiten- und Rückwänden und deren Winkel zur Strahlachse, die Oberflächengüte, sowie Verunreinigungen im Material die Kurvenform und führen zu Abweichungen vom ideal exponentiellen Verlauf. Alle hier dargestellten Messungen erfolgten mit Ein- und Austrittsspalten von je 2mm Breite, was bei einer Dispersion von etwa 2nm/mm zu einer spektralen Bandbreite von 4nm führt.

Abbildung 3.8 zeigt eine Messung eines ähnlichen Materialstückes, wie es in Abbildung 3.7



(a) Integrales, über alle Wellenlängen summiertes Abschwächverhalten, aufgenommen ohne Verwendung eines Monochromators.



(b) Mit Monochromator für die gezeigten Wellenlängen gemessenes Abschwächverhalten. Die Signalhöhen aller Meßpunkte sind zueinander nicht durch Verwendung einer Apparatefunktion korrigiert.

Abbildung 3.9: Ortsabhängige Intensitätsverläufe derselben Probe, einmal ohne und einmal mit Monochromator gemessen (30 ppm Y7 in PMMA mit 360 nm UV-Absorber, 250 x 40 x 2 mm³). Die Werte der Absorptionskoeffizienten µ geben die nach Gl. 3.7 bzw. 3.11 angepaßten (Fits: durchgezogene Kurven) integralen bzw. monochromatischen Absorptionsverläufe wieder.

30

dargestellt ist. Die gemessene Fluoreszenzintensität ist in Abhängigkeit von Probenort und Wellenlänge aufgetragen, aufgetragen. Anhand dieser Messungen lassen sich monochromatische Abschwächlängen bestimmen, wenn man die Abschwächkurven für je eine Wellenlängenposition aus Abbildung 3.8 "herausschneidet".

Die monochromatische Anpassung erhält dann folgendes Aussehen:

$$I(x,\lambda) = \frac{I(x=0,\lambda)}{1+R(\lambda)\cdot e^{-2\mu(\lambda)L}} \cdot \left(e^{-\mu(\lambda)\cdot x} + R \cdot e^{-\mu(\lambda)\cdot(2L-x)}\right).$$
(3.11)

Die hier verwendeten Größen entsprechen denen in Gleichung 3.7.



Abbildung 3.10: Für verschiedene Entfernungen des Anregungsortes von der Ausleseseite der Probe aufgenommene Fluoreszenzspektren einer Wellenlängenschieberprobe (aus Abb. 3.9). Die durchgezogenen Kurven zeigen beginnend bei 245 mm Entfernung von der Ausleseseite (niedrigste Signalhöhe) in 10 mm Schritten bis 25 mm vor der Ausleseseite 23 Fluoreszenzspektren. Die gestrichelte Kurve gibt den Intensitätsverlauf einer anderen Probe derselben Zusammensetzung bei streifender Anregung direkt an der Oberfläche wieder (s. Abb. 4.16). Alle Spektren sind unkorrigiert.

Weil quantitative Aussagen anhand von Abbildung 3.8 schwierig sind, stellt Abbildung 3.9 zwei Messungen einer unbestrahlten Wellenlängenschieberprobe mit Fahrtisch einmal ohne und einmal mit Monochromator einander gegenüber. Die Ergebnisse der Exponentialfits nach Gleichung 3.11 in Abbildung 3.9b zeigen eine deutlich wachsende Absorption mit abnehmender Wellenlänge. Dieses Verhalten führt zu einer schnellen Unterdrückung der kurzwelligen Spektralanteile bei wachsender Entfernung des Anregungsortes von der Ausleseseite der Probe. Abbildung 3.10 zeigt dazu die (unkorrigierten) Fluoreszenzspektren einer Wellenlängenschieberprobe, die beginnend bei 25 mm Entfernung von der Ausleseseite in 10 mm-Schritten bis 245 mm aufgenommen wurden (durchgezogene Kurven). Die gestrichelte Kurve zeigt ein ebenfalls unkorrigiertes Fluoreszenzspektrum eines anderen Probenstückes derselben Zusammensetzung. das in streifender Anregung an der Probenoberfläche gewonnen wurde (s. Abb. 4.16). Abbildung 3.11 zeigt die spektrale Abhängigkeit des Absorptionskoeffizienten für alle gemessenen Wellenlängen.

Aus Gleichung 3.11 kann durch Integration über den Wellenlängenbereich der Emission λ_{emiss} bei Berücksichtigung der spektralen Empfindlichkeit der Apparatur $A(\lambda)$ (vgl. Abschnitt 4.5 und Anhang A.4) eine ortsabhängige Gesamtintensität gewonnen werden:

$$I(x) = \int_{\lambda_{\text{emiss}}} A(\lambda) \cdot I(x, \lambda) \quad d\lambda.$$
 (3.12)

Ergänzend sei darauf hingewiesen, daß die Größe x in den Gleichungen 3.11 und 3.7 nur die Abhängigkeit der Fluoreszenzintensität vom Anregungsort darstellt, damit aber nicht gleich dem wahren bzw. mittleren zurückgelegten Lichtweg des Fluoreszenzlichtes in der Probe ist. Weil sich das von den Farbzentren in der Probe ausgesandte Licht homogen in allen Raumrichtungen ausbreitet, tragen zur gemessenen Intensität an der Auslesefläche Lichtanteile mit sehr unterschiedlichen Lichtwegen bei: Es werden sowohl mehrfach an den Probenbegrenzungen reflektierte Lichtanteile mit großen durchlaufenen Lichtwegen als auch "direkte" Anteile ohne Reflexionen als Intensität vermessen. Eine mittlere Lichtweglänge, die durch gewichtete Berücksichtigung aller möglichen Lichtwege definiert werden könnte, wäre also größer als die in Gleichung 3.11 genannte Probenkoordinate x. Abschnitt 4.6 und Anhang A.2 zeigen ein Verfahren zur vereinfachten Abschätzung dieser mittleren Lichtweglänge.



Abbildung 3.11: Wellenlängenabhängigkeit des Absorptionskoeffizienten μ_{tisch} nach Messung mit Monochromator an Y7 Wellenlängenschieberprobe (aus Abb. 3.9) und Exponentialanpassung nach Gleichung 3.11 (ohne geometrische Korrektur).

Die Vorteile der Benutzung des Monochromators werden in den Abschnitten 4.6 und 4.7 im Zusammenhang mit der Übertragbarkeit der Meßergebnisse auf die anderen Apparaturen diskutiert. Im Anschluß an den Ergebnisvergleich mit Spektralphotometer- und Tischmessungen

33

ohne Monochromator erfolgen dort Betrachtungen bezüglich ihrer Gültigkeit bei unterschiedlichen Probengeometrien.

3.1.3 Datennahme und -bearbeitung an den optischen Aufbauten



Abbildung 3.12: Datenfluß zwischen optischen Meßapparaturen und Auswertungsrechner (s. Text).

Messungen

Die im vorausgegangenen Abschnitt beschriebenen optischen Apparaturen zur Schadensbestimmung werden mit Hilfe eines automatisierten Steuerungs- und Datennahmesystems [Kam89] betrieben. Die jeweiligen Meßrechner sind ein PC-386/40 mit mathematischem Coprozessor am Spektralphotometer und ein OS-9 Computer in VME-Bus Umgebung am Fahrtisch. Auf beiden Rechnerumgebungen wurde dasselbe Datennahmesystem "WLS" [Kam89] implementiert. Dieses Programm zur Steuerung aller Schrittmotoren und der Datenauslese mit Analog-Digital-Convertern an den Aufbauten erlaubt eine einheitliche Bedienung an allen Apparaturen. Der einfache Befehlsinterpreter macht zudem eine schnelle und flexible Anpassung an die jeweiligen experimentellen Gegebenheiten wie auszulesende Spektralbereiche, Fahrweglängen bei unterschiedlichen Probengeometrien usw. möglich.

Auch die aufgenommenen Daten werden in beiden Rechnersystemen in gleicher Form gespeichert, so daß auch auf Seiten der Datenauswertung mit einheitlichen Auswertungswerkzeugen gearbeitet werden kann.

Bearbeitung der Daten

Nach der Aufnahme der Daten mit den Meßrechnersystemen werden die in binärem Zahlenformat vorliegenden Werte an einen gemeinsamen Auswertungscomputer auf dem Wege einer schnellen Ethernet-Datenleitung übermittelt (siehe Abbildung 3.12). Dies geschieht, um die Kapazitäten der Meßrechner nicht zusätzlich mit Auswertungen zu belasten und so den Meßbetrieb zu behindern. Außerdem kann auf nur einem Auswertesystem leichter für eine einheitliche Datenaufbewahrung und Weiterverarbeitung gesorgt werden.

Der Auswertungsrechner ist eine IRIS 4D 25 S der Firma Silicon Graphics mit UNIX System V.4 Betriebssystem. Die Meßdaten werden hier einheitlich verwaltet und auf Datenbändern (Typ "Exabyte") gesichert.

Zur weiteren Bearbeitung werden die Binärdaten der unterschiedlichen Meßapparaturen mit dem flexiblen Umwandlungsprogramm tica katalogisiert und in das sogenannte "ZEBRA"-Datenformat zur Weiterbehandlung mit dem "PAW"-Analysepaket [Paw92] verwandelt. Hier steht dann ein breites Spektrum unterschiedlicher "PAW"-Programme zur endgültigen Datenaufbereitung, Auswertung und graphischen Darstellung zur Verfügung.

3.2 Bestrahlungsquellen

3.2.1 ⁶⁰Co-Quelle am HMI

Ein Teil der Bestrahlungen wurde am Hahn-Meitner-Institut (HMI) in Berlin durchgeführt. Die dortige ⁵⁰Co-Quelle besteht aus 8 zylindrischen Stäben, die konzentrisch in der Mitte eines Probenpositionierungstisches ausgefahren werden können. Die Dosisleistung liegt — je nach Entfernung von der Quelle — bei wenigen kGy/h auf dem Probentisch bis zu einigen Gy/h hinter einer Bleiziegelwand.

Die Strahlungsfeldüberwachung geschieht mit Fricke-Dosimetern und wird mit 5 % Genauigkeit angegeben. Zusätzlich wurden bei den Bestrahlungen eigene Dosimeter (Alanin) eingesetzt.

Abbildung 3.13: Schematischer Aufbau der Bestrahlungsquelle am HMI.

3.2.2 Forschungsreaktor FRG-1 am GKSS

Weitere Bestrahlungen wurden im Neutronen- γ -Mischfeld des Reaktorkerns des Forschungsreaktors FRG-1 am "Forschungszentrum Geesthacht GmbH (GKSS)" durchgeführt. Bei diesem "Materialtest-Schwimmbad-Reaktor" ("MTR"-Typ) befindet sich der Reaktorkern in einem etwa neun Meter tiefen, nach oben offenem Wasserbecken. Alle Proben wurden im Kern des Reaktors bestrahlt und dorthin über ein Rohrführungssystem durch das Wasserbecken geleitet. Der Reaktorkern des 5 MW-Reaktors wird aus 23 Platten gebildet, die schwach angereichertes Uran (20 % $\frac{255}{22}$ U, 80 % $\frac{234}{23}$ U) enthalten. Dieses ist als U₃Si₂ in eine Al-Matrix eingebettet und beidseitig von einer Al-Mg-Legierung umgeben [Kru93]. Die Neutronenflüsse thermischer, epithermischer und schneller Neutronen variieren je nach Bestrahlungsposition und werden vom GKSS angegeben. Da der γ -Strahlungsuntergrund vom GKSS nicht genannt wird, wurde eine eigene γ -Dosimetrie mit Alanin durchgeführt. Die genauen Flüsse für die gewählte Bestrahlungsposition und Ausführungen zur γ -Dosimetrie finden sich in Abschnitt 4.2.1.

3.3 Elektronenspinresonanz-Messungen

Bei der Bestrahlung von Polymeren ist ein wesentlicher Effekt die Entstehung von Radikalen (siehe Kapitel 2). Diese können mit Elektronenspinresonanz-Messungen (ESR) nachgewiesen werden. Bei gleichartigen Probenstücken ist darüber hinaus eine einfache Möglichkeit zum relativen Vergleich von Radikalanzahlen gegeben: Ein Zusammenhang zwischen absorbierter Dosis und der im Material gebildeten Radikaldichte kann hergestellt werden.

Das bietet die Möglichkeit, bei den optisch untersuchten Stoffen chemische Zusammenhänge offenzulegen, um besser die im Material bei und nach Bestrahlung stattfindenden Prozesse zu verstehen.

Eine weitere Nutzung der ESR für strahlungstechnische Untersuchungen ergibt sich für den Bereich Dosimetrie. Hier zeigt Alanin die Bildung stabiler Radikale bei Bestrahlung, deren Anzahl über weite Dosisbereiche linear zur verabreichten Dosis wächst. Alanindosimeter sind wegen ihrer problemlosen Handhabung und Auswertung (sofern ein ESR-Gerät verfügbar ist) gut geeignet, Dosen und Dosisverteilungen in experimentellen Umgebungen zu bestimmen. Sie wurden in den Experimenten zur Strahlungsresistenz in unmittelbarer Nähe der zu bestrahlenden Proben angebracht und erlaubten so eine Kontrolle der verabreichten Strahlungsdosis und ihrer Verteilung. (Insbesondere bei Niedrigdosisleistungsbestrahlungen stellte sich heraus, daß eine Überwachung der Dosisverteilung von großer Wichtigkeit war, da eine ungleichmäßige Abschirmung der Strahlung zu teilweise 50 % igen Dosisschwankungen führte.)

Es werden deshalb im ersten Teil dieses Abschnitts die physikalischen und technischen Grundlagen der ESR erläutert. In einem zweiten Teil wird dann ausführlich auf die zur Alanin-Dosimetrie notwendige Eichprozedur eingegangen und die Möglichkeiten dieser Dosismessung diskutiert.

3.3.1 Grundlagen der ESR

Theoretische Betrachtungen

Die Hüllenelektronen jedes Stoffes wirken aufgrund ihres Spins als magnetische Dipole. Diese richten sich unter Einfluß eines Magnetfeldes so aus, daß eine Präzessionsbewegung des Spins um die Magnetfeldrichtung erfolgt. Der daraus resultierende paramagnetische Charakter eines Stoffes tritt aber nur dann nach außen hin in Erscheinung, wenn kein zweites Elektron entgegengesetzten Spins im selben Zustand dieses magnetische Moment kompensiert.

Unkompensierte Spins entstehen z.B. bei homolytischer Molekülspaltung: Die gebildeten Radikale weisen nach außen hin unkompensierte magnetische Momente auf, welche die Möglichkeit des Nachweises mit der Elektronenspinresonanz eröffnen.

Der Vektor des magnetischen Moments eines freien Elektrons ist

$$\vec{\mu}_{e} = -g_{e}\mu_{b}\vec{S}, \qquad (3.13)$$

mit
$$g_{e} = 2,002319; \text{ g-Faktor des freien Elektronenspins,}$$

$$\mu_{b} = 9,27410 \cdot 10^{24} \text{ JT}^{-1}; \text{ Bohrsches Magneton,}$$

 \vec{S} = Spinvektor des Elektrons.

Die Energie E eines solchen Elektrons im magnetischen Feld (Feldvektor \vec{B}) ist dann

$$E = -\vec{\mu}_e \vec{B}. \tag{3.14}$$

Durch Einsetzen der Gleichung 3.13 folgt daraus

$$E = g_e \mu_b \vec{S} \vec{B}. \tag{3.15}$$

Weil für den Spinvektor des Elektrons im Magnetfeld nur zwei Ausrichtungen möglich sind, ergeben sich daraus mit der Spinquantenzahl des Elektrons 1/2 zwei Energiezustände (Zeeman-Aufspaltung), wobei E_0 die Energie für $\vec{B} = 0$ beschreibt:

$$E_1 = E_0 + \frac{1}{2}g_e\mu_b B$$
 und $E_2 = E_0 - \frac{1}{2}g_e\mu_b B$. (3.16)

Die Energiedifferenz beider Zustände ist dann

$$\Delta E = E_1 - E_2 = g_* \mu_b B. \tag{3.17}$$



35

Die Aufspaltung der Energiezustände wird in der Praxis durch Anlegen eines äußeren Magnetfeldes \vec{B} mit Magnetfeldspulen (s. Abb. 3.14) erreicht. Wird gleichzeitig ein magnetisches Wechselfeld $\vec{B}_{\mu W} \cdot sin\omega t$ senkrecht zu \vec{B} eingestrahlt, so können Übergänge zwischen beiden Energiezuständen angeregt werden. In der Praxis führt das Einstrahlen einer Mikrowelle an den Probenort zum erforderlichen magnetischen Wechselfeld. Man spricht von Resonanz, wenn die Energie des magnetischen Wechselfeldes $h \cdot \omega/2\pi = h\nu$ mit der durch das äußere Magnetfeld erzeugten Energiedifferenz ΔE übereinstimmt. Im Resonanzfall gilt also:

$$\Delta E = h\nu = g_e \mu_b B, \qquad (3.18)$$

$$g_e = \frac{h\nu}{\mu_b B}.$$
 (3.19)

In der Praxis werden Resonanzen in diesen Einheiten des g-Faktors g_e beschrieben, da unterschiedliche Typen von ESR-Geräten verschiedene Mikrowellenfrequenzen zur Resonanzabsorption nutzen. Deshalb eignen sich ν oder *B* nicht allein zur eindeutigen Linienidentifikation. Als Beispiel für die Darstellung der Absorption gegen den g-Faktor seien die Abbildungen 3.16a und 3.16b genannt.

Soll Absorption in einem Material nach außen meßbar werden, so müssen die Energiezustände E_1 und E_2 unterschiedlich stark besetzt sein. Das Verhältnis der Besetzungen im thermischen Gleichgewicht wird gegeben durch die Boltzmann-Verteilung:

$$\frac{N(E_1)}{N(E_2)} = \exp\left(\frac{\Delta E}{k_B T}\right) = \exp\left(\frac{g_e \mu_b B}{k_B T}\right)$$
(3.20)
mit
$$k_B = 1,38062 \cdot 10^{-23} \text{ JK}^{-1}; \text{ Boltzmannkonstante},$$
$$T = \text{Temperatur.}$$

Die Intensität des absorbierten Signals ist proportional der Populationsdifferenz Δn und damit umgekehrt proportional der Temperatur:

$$\Delta n = N(E_1) - N(E_2) = \frac{Ng_e\mu_b B}{2k_B T}.$$
(3.21)

 $N = N(E_1) + N(E_2)$ ist die Gesamtanzahl ungepaarter Elektronen in beiden Populationen.

Die Übergangswahrscheinlichkeit zwischen beiden Niveaus ist proportional zur Mikrowellenenergiedichte. Dabei steigt die Intensität des Meßsignals auch zunächst mit der zugeführten Mikrowellenleistung, solange die Populationszahlen beider Energieniveaus stark unterschiedlich sind. Werden aber die Besetzungszahlen vergleichbar, so setzt eine Sättigung ein: Die Absorptionskurve flacht wieder ab, verbreitert sich und verschwindet bei gleicher Besetzungszahl beider Niveaus schließlich ganz, weil dann insgesamt gleichviel Energie absorbiert wie emittiert wird.

Der vorliegende Abschnitt sollte eine Grundlage für das Verständnis der wichtigsten Mechanismen der ESR liefern. Weitergehende Betrachtungen müßten berücksichtigen, daß in radikalischen Stoffen keine wirklich freien Elektronen vorliegen und z.B. Wechselwirkungen mit den Kernprotonen (Zeeman-Hyperfein-Aufspaltungen) ein weitaus komplizierteres Absorptionsverhalten nach sich ziehen. Für weitergehende theoretische Betrachtungen sei verwiesen auf ausführlichere Darstellungen z.B. in [Gor79] oder in [Ran77].



Abbildung 3.14: Schematischer Aufbau eines ESR-Gerätes

Experimentelle Durchführung der ESR

Vergleichbar mit anderen Einrichtungen der Absorptionsspektroskopie (z.B. Kernspinresonanz) besteht auch ein typisches ESR-Gerät aus einem energieliefernden Sendebaustein, einem Probenraum zur möglichen Absorption und einem Detektor. Abbildung 3.14 zeigt schematisch den Aufbau eines typischen ESR-Gerätes, dessen Funktionsweise nun erläutert werden soll.

Im Falle der ESR stellt ein Mikrowellenklystron die zur Absorption benötigte Energie bereit. Die Mikrowellenfrequenz der verwendeten ESR-Geräte liegt im sogenannten "X-Band" d.h. um ca. 9 GHz. Die Mikrowellenstrahlung wird vom Klystron über regelbare Abschwächglieder auf rechteckige Kupferhohlleiter mit etwa 3 cm Seitenlänge geführt, was der Wellenlänge der transportierten Mikrowellen entspricht. Der eigentliche Probenmeßraum besteht aus einem quaderförmigen Resonator (Kavität) und hat die Aufgabe, die Mikrowellenleistung am Ort der Probe zu konzentrieren. Die verwendenten ESR-Geräte sind mit sogenannten "TE102-Moden"-Kavitäten ausgestattet, die als reflektierende Elemente in die kreuzförmig angeordnete Wellenleitergeometrie ("Magic Tee") integriert sind. Die Einkoppelung der Welle kann am Eingang des Resonators mittels einer verstellbaren sogenannten Iris-Blende kontrolliert werden. In der benutzten Kavität kommt es im Falle der Resonanz zur Ausrichtung der Magnetfeldlinien der Mikrowelle senkrecht zum äußeren Magnetfeld. Ein sogenannter "Referenzarm", der in Amplitude und Phase einstellbar ist, transportiert einen Teil der Mikrowelle direkt zur Detektordiode. Er sorgt bei richtiger Einstellung dafür, daß in der Detektordiode ein bestimmter Strom fließt, so daß die Diode in einem linearen Bereich arbeitet und optimale Empfindlichkeit aufweist. Die schließlich vom Probenraum reflektierte Mikrowellenleistung kann dann mit der Diode im Strahlengang vermessen werden.

Das äußere Magnetfeld wird bereitgestellt von zwei Spulen, die im Innern des Probenraumes

37

ein homogenes, sehr stabiles Magnetfeld erzeugen. Die Feldstärke von X-Band Spektrometern liegt um 0,35 T. Um die Resonanzbedingung zu erfüllen, wird dieses Magnetfeld langsam kontinuierlich im Bereich der Resonanz verändert. (Dieser Weg wird einer Frequenzänderung der Mikrowelle bevorzugt, da letzteres technisch schwieriger ist und z.B. eine dauernde Nachstimmung des Resonators erfordern würde.)

Zur Detektion der Absorption wäre nun eine einfache Messung des Diodengleichstroms denkbar. Aus Gründen wesentlich gesteigerter Nachweisempfindlichkeit wird aber dem kontinuierlich veränderlichen Magnetfeld ein weiteres, durch zwei an der Kavität installierte Helmholtzspulen erzeugtes Magnetfeld überlagert. Dieses Feld cszilliert mit einstellbarer Amplitude (Größenordnung: 0,1 mT) mit einer Frequenz von 100 kHz. Mit einem durch den gemeinsamen Oszillator gesteuerten phasensensitiven Detektor ist eine Messung der Diodenstromänderung im Bereich der Magnetfeldoszillationen möglich. Das gewonnene Meßsignal stellt somit ein nach dem äußeren Magnetfeld differenziertes Absorptionsspektrum dar.

Ein Beispiel dieses Meßsignals ist in Abbildung 3.16a gezeigt. Das eigentliche Absorptionsspektrum kann daraus mittels Integration gewonnen werden, wie Abbildung 3.16b zeigt.

3.3.2 Dosismessungen mit Alanin





Das bei den vorliegenden Messungen verwendete Dosimetermaterial ist in Zusammenarbeit mit der "Radiation Protection Group" des CERN [Sch89] von der Firma Kabelmetal, Hannover (Alcatel), entwickelt und wird als zylinderförmiges Endloskabel gefertigt. Das Kabel hat einen Durchmesser von 4,8 mm und besteht zu 33 % aus EPR ("Ethylene Propylene Rubber") und zu 67 % aus DL- α -Alanin CH₃-CH(NH₂)-COOH (siehe auch Strukturformel in Abbildung 3.15).

Bei Bestrahlung bilden sich hauptsächlich stabile Radikale des Typs $CH_3-C^*H-COOH$, die mit ESR meßbar sind. Es konnte gezeigt werden [Reg81, Sch89], daß die Radikalkonzentration im bestrahlten Alanin im Bereich $10-10^5$ Gy monoton mit der absorbierten Strahlungsdosis wächst und dabei bis 10^4 Gy dieser proportional ist. Weitere Vorteile der Alanin-Dosimetrie sind

- strukturelle Ähnlichkeit mit den untersuchten Polymeren;
- einfache Handhabung des Materials;

- schnelle, wiederholbare Auswertung der Dosimeter;
- keine Dosisleistungsabhängigkeit (bei 1-10⁴ Gy/h);
- geringe zeitliche Signaländerung (<≈ 1 % pro Jahr);
- geringe Kosten (≈ 20,-DM/m).



Abbildung 3.16a: ESR-Meßsignal eines bestrahlten Alanin Dosimeters

Abbildung 3.16b: Integral des ESR-Meßsignals links

Abbildung 3.16a zeigt das typische Meßsignal einer Alanin-Probe, die mit einer ⁶⁰Co Quelle bestrahlt wurde und 30 kGy Gesamtdosis bei einer Dosisleistung von 3,9 kGy/h absorbierte. Abbildung 3.16b zeigt das Integral dieses Meßsignals, welches dem Mikrowellenabsorptionsspektrum der Probe entspricht. Die Fläche unter der Absorptionskurve 3.16b (schraffiert angedeutet) ist das Maß für die im Material vorhandene Zahl von Radikalen. Weil die Form des Absorptionsspektrums über alle Dosisbereiche nahezu unverändert bleibt, ist die Maximalamplitude im gemessenen ESR-Signal (Abbildung 3.16a) proportional zur Fläche der Absorptionskurve und kann als Dosismaß verwendet werden. In der Praxis erweist sich diese direkte Art der Messung zudem als genauer, da Nullinienfehler die durchzuführenden Integrationen ungenau werden lassen.

3.3.3 Eichung der Alanin-Dosismessung

Vorbemerkung

Das zur Verfügung stehende ESR-Gerät muß zur Auswertung von Alanin-Dosimetern zuvor mit Proben geeicht werden, die in einem definierten Strahlungsfeld mit bekannter Dosis bestrahlt wurden. Auf diese Weise kann dann aus der gemessenen ESR-Signalstärke einer Dosimeterprobe unbekannter Dosis auf die absorbierte Strahlungsdosis geschlossen werden.

39

rheitsounid

1.5 2 2.5 3

Mikrowellenleistung (/mW)

250

200 E

150

ESR - Amplitu

50

n

42

41

Arbeitsounid

10 12.5

5 7.5

Modulationsamplitude (G)



Dosis (Gy)	10	10 ²	10 ³	104	10 ⁵	2·10 ⁵	5·10 ⁵
Verstärkung	1.25·10 ⁶	5·10 ^{\$}	6. 3 -10 ³	6.3-10 ³	1.25-10 ³	80	80
	56.5	204.5	261.5	214.0	215.0	175.0	202 5
ESR-	37.0	188.0	230.0	211.0	210.0	191.0	201.0
Signalhöhe	59.5	180.5	230.0	213.0	200.0	194.0	199.0
(mm)	57.0	201.5	242.5	199.0	226.5	213.5	191.0
	54.5	190.0	23 1.0	219 .0	218.0	187.5	204.0
Normierungsfaktor	0.0504	0.126	1	10	50.4	78.8	78.8
	2.85	25.77	261.5	2140	10836	13790	15957
ESR-	1.86	23.69	230.0	2110	10584	15051	15839
Signalhöhe	3.00	22.74	230.0	2130	10080	15287	15681
(normiert)	2.87	25.39	242.5	1990	11416	16824	15051
	2.75	23.94	231.0	2190	10987	14775	16075
Mittelwert (normiert)	2.67	24.3	239.0	2112	10781	15145	15721
σ	0.46	1.3	13.6	74	485	1098	402
$\sigma/(\sqrt{5} \cdot \text{Mittelwert})$ (%)	7.66	2.30	2.55	1.57	2.05	3 24	1.14

So sollte eine optimale Mikrowellenleistung gefunden werden, die eine möglichst hohe Signalausbeute erlaubt, ohne dabei Sättigungseffekte (s.o.) zu zeigen. Zu diesem Zweck wird für eine typische bestrahlte Probe (hier etwa 300 Gy absorbierte Gesamtdosis) die Mikrowellenleistung über das Dämpfungsglied variiert und dabei die zugehörige Signalamplitude aufgezeichnet. Der optimale Arbeitspunkt (hier 0,22 mW) wird so gewählt, daß er sich im Bereich linearer Änderung der Signalamplitude mit der Quadratwurzel der Mikrowellenleistung bei möglichst hoher Mikrowellenleistung befindet. Abbildung 3.17a zeigt die entsprechende Messung.

Ein ähnliches Verfahren liefert die optimale Modulationsamplitude des den Hauptspulen überlagerten oszillierenden Magnetfeldes. Hier ist es wichtig, daß einerseits möglichst große Amplituden für maximale Empfindlichkeit und Signalausbeute gewählt werden. Andererseits darf es dabei nicht zu einer Glättung des Spektrums kommen: Ist die Wechselfeldamplitude nicht mehr klein bezüglich der Breite der Absorptionslinien, so findet eine Mittelung über zu große Bereiche statt, die weniger ausgeprägte Maxima und Minima im gemessenen Signal verursacht. Als verwendbare Modulationsamplituden werden deshalb die Bereiche linearer Änderung der gemessenen Signalamplituden mit den Modulationsamplituden betrachtet. Eine optimale Modulationsamplitude stellt der Maximalwert innerhalb dieses linearen Bereiches (hier 2,5 G) dar, wie ihn Abbildung 3.17b zeigt.

Schließlich müssen noch Verstärkung und Zeitkonstante des angeschlossenen Analog-Digital-Konverters der Signalstärke und -form angepaßt werden. Damit ergibt sich im Falle der

Abbildung 3.17a: Optimale Mikrowellenenergie zur Alanin-Dosimetrie.

0.5 1

300

250 E 200

150

50

0 2.5

Für die Eichung¹ wurden im Dosisbereich 10 — $5 \cdot 10^5$ Gy (bezogen auf Fricke-Lösung) mit einer ⁶⁰Co bestrahlte Alanin Dosimeter verwendet, die vom CERN für diesen Zweck zur Verfügung gestellt wurden. Genauere Angaben zur Bestrahlung und Auswertung der Proben am CERN siehe [Sch89].

Festlegung der Geräteeinstellungen

Vor Beginn der eigentlichen Kalibration müssen zunächst die Geräteeinstellungen optimiert werden. Als Halterung der Alanin-Dosimeter (4,8 mm Durchmesser, 30 mm Länge) steht ein Quarzglasröhrchen mit 5 mm Innendurchmesser und ca. 150 mm Länge zur Verfügung. Dieses muß mit einer Alaninprobe gefüllt und in den Resonator gehängt werden. Dann ist eine Abstimmung der Mikrowellenresonanz mit Referenzarm und Irisblenden möglich.

Bei typischen Radikalen zeigen die ungepaarten Elektronen annähernd das Verhalten freier Elektronen, d.h. es ist eine Resonanz im Bereich $g_e \approx 2$ anzusetzen. Mit der feststehenden Mikrowellenfrequenz von 9,61 GHz kann aus Gleichung 3.19 die zur Absorption nötige Magnetfeldstärke ($\approx 0,3440$ T) berechnet werden.

Nach dieser Voreinstellung wird das Feldstärkenintervall genau festgelegt, durch das die Magnetfeldspulen zur Absorptionsmessung hindurchfahren sollen ("Scan Range").

Festlegung des Arbeitspunktes

Nach den Voreinstellungen müssen präzise optimale Abstimmungen mit dem Ziel möglichst reproduzierbarer Messungen erfolgen.

Abbildung 3.17b: Optimale Amplitude des oszillierenden Magnetfeldes bei Alanin-Dosimetrie.

¹Die Eichung wurde vorgenommen mit hilfreicher Unterstützung durch Herrn Coninckx vom CERN an einem Bruker ESR-Gerät des Instituts für Physikalische Chemie der Universität Hamburg, das freundlicherweise von Herrn Prof. Dr. Gunßer zur Verfügung gestellt wurde.

beschriebenen Kalibrations- und Dosismessungen die folgende Zusammenstellung von Geräteparametern:

- Mikrowellenfrequenz = 9.61 GHz
- Mikrowellenleistung = 0,22 mW bei 29 dB Dämpfung
- Zentrale Magnetfeldstärke = 0,3440 T
- Intervallbreite des duchgefahrenen Magnetfeldes = 0,0200 T
- Dauer einer Messung (Durchfahren des B-Feldintervalls) = 50 s
- Modulationsfrequenz des überlagerten Wechselfeldes = 100 kHz
- Modulationsamplitude des überlagerten Wechselfeldes = 0,25 mT
- Verstärkung des AD-Wandlers = 10⁵
- Konversionszeit des AD-Wandlers = 50 ms

Kalibrationsmessung

Zur Kalibrationsmessung standen je fünf Alanin-Dosimeter bei sieben verschiedenen absorbierten Gesamtdosen zur Verfügung.

Die Tabelle 3.3.3 zeigt für jede Dosis die am Gerät eingestellte Verstärkung, die für jede Probe gemessene Signalhöhe vor und nach Ausgleich mit den Skalierungsfaktoren und die resultierenden Mittelwerte. Diese liefern schließlich den Zusammenhang von absorbierter Dosis und ESR-Meßsignal, welcher in Abbildung 3.18 dargestellt ist. Als Signalhöhe ist die Maximalamplitude des gemessenen Ableitungsspektrums auf dem Ergebnisausdruck in mm verwendet worden, wobei die anschließende Normierung auf einen ADC-Verstärkungsfaktor von 6,3-10⁴ erfolgte.

Als Kalibrationskurve dient bei allen folgenden Messungen an Alanindosimetern ein Polynom vierten Grades, das den Meßpunkten angepaßt wurde:

Dosis (Gy) = $a + bx + cx^2 + dx^3 + ex^4$, (3.22) mit $x : ESR-Signalamplitude in mm bei Verstärkung = 6,3.10^4$ a = -0,7 Gy b = 4,13 Gy/mm $c = 2,5.10^{-4} \text{ Gy/mm}^2$ $d = 1,6.10^{-6} \text{ Gy/mm}^3$ $e = 4,7.10^{-13} \text{ Gy/mm}^4$

Die Genauigkeit der Kalibration muß aufgrund der Güte des Strahlungsfeldes, in dem die Eichproben behandelt wurden (5%), und dem Fehler der ESR-Messungen (weniger als 3% für Dosen ab 100 Gy) mit insgesamt $\pm 5\%$ angesetzt werden.



Abbildung 3.18: Kalibrationskurve der Alanin-Dosimeter

44

Kapitel 4

Durchgeführte Untersuchungen

4.1 Einführung zu den Bestrahlungsexperimenten

In heutigen und zukünftigen Experimenten der Teilchenphysik werden die Meßinstrumente über Jahrzehnte betrieben und verlangen eine hohe gleichbleibende Qualität ihrer Komponenten. Besonderes Augenmerk erfordern dabei optische Einheiten wie Szintillatoren und Lichtleiter, die oft essentielle Informationen wie z.B. die Teilchenenergie im Kalorimeter bereitstellen sollen.

Vor dem Bau solcher Detektoren müssen deren optische Komponenten somit unter dem Gesichtspunkt der Strahlungsstabilität sehr sorgfältig ausgewählt werden. Hierzu sind umfassende Testreihen nötig, die unter Berücksichtigung möglichst vieler denkbarer Umgebungsbedingungen unterschiedliche in Frage kommende Materialien studieren. Aus diesen Untersuchungsreihen sind dann am besten geeignete Stoffe für den Einbau in einen Detektor auszuwählen. Weiterhin sind Aussagen über die zu erwartende Entwicklung der verwendeten Materialien unter Zeitund Strahlungseinflüssen sehr wichtig.

Ein sehr großes Problem verläßlicher Voraussagen stellt die lange Betriebszeit der Detektoren in der Teilchenphysik dar. In Voruntersuchungen sollen möglichst schnell Ergebnisse und Entscheidungen zur Materialauswahl vorgelegt werden. Gerade bei neueren Stoffen ist es zudem nicht möglich, auf Erfahrungen mit älteren Detektoren zurückzugreifen.

Aus diesen Gründen werden in Voruntersuchungen z.B. meist um Größenordnungen höhere Dosisleistungen zu Testbestrahlungen verwendet, als sie unter wirklichen Einsatzbedingungen vorliegen. Um deutliche Effekte sichtbar zu machen und Unterschiede verläßlich nachweisen zu können, ist außerdem oft eine deutlich höhere Gesamtdosis vonnöten, als sie für die untersuchten Stoffe im Detektorbetrieb je auftreten wird.

Weil aus den genannten Gründen echte Umgebungsbedingungen während der Voruntersuchungen in wichtigen Punkten nicht realisierbar sind, ist eine Fortsetzung von Testreihen auch nach Fällen einer Entscheidung über einzubauende Materialien zwingend notwendig. Im Vergleich mit Messungen über Änderungen im laufenden Detektor kann die Gültigkeit z.B. der vorgenommenen Extrapolationen von hohen auf niedrige Dosisleistungen zusätzlich laufend überprüft werden. Bei Abweichungen können deren Ursachen untersucht und gegebenenfalls Gegenmaßnahmen eingeleitet werden.

Ein solches Vorgehen sammelt Informationen über die benutzten Stoffe und vergrößert damit den Umfang verfügbarer Erfahrungen. Diese kommen dann zukünftigen Detektoren in der Teilchenphysik, aber auch anderen Anwendungen in Umgebungen mit vorhandenen Strahlungsfeld zugute. Einen wichtigen Beitrag leisten solche Untersuchungen auch beim Entwurf zukünftiger strahlenharter Stoffe.

4.1.1 Bezeichnungen auftretender Bestrahlungseffekte

Nach einer Bestrahlung erleiden sowohl das Basismaterial als auch zugegebene Stoffe in einer optischen Komponente eines Detektors Veränderungen. Mögliche Effekte und Mechanismen wurden bereits in Kapitel 2 diskutiert, es führen z.B. Kettenbrüche oder ~vernetzungen in polymeren Basisstoffen zu optisch registrierbaren Veränderungen.

Bei Bestrahlung können zusätzliche (eventuell auch fluoreszierende) Absorptionszentren entstehen, aber auch bestehende (z.B. Farbstoffe) vernichtet werden. Die durch eine Bestrahlung feststellbaren optischen Veränderungen werden im folgenden als Schaden oder Stahlenschaden bezeichnet.

Der unmittelbar nach Bestrahlungsende meßbare Schaden — als Anfangsschaden bezeichnet — ist zeitlich nicht konstant, sondern unterliegt u.a. wahrscheinlich aufgrund von Reaktionen der enstandenen Radikale zeitlichen Veränderungen.

Beobachtet werden sowohl ein Rückgang des Anfangsschadens, das sogenannte Erholen oder Ausheilen, als auch gegenteilige Effekte (bislang nur bei Stoffen auf PMMA-Basis beobachtet), die für begrenzte Zeit eine Schadensvergrößerung bewirken und als build up bezeichnet werden (s. Abbildung 4.1). Oft überlagern sich diese Effekte und gestalten eine Trennung aus den Meßdaten heraus schwierig. Allgemein kann der von Dosis (D) und Zeit (t) abhängige Schadensverlauf nach Bestrahlungsende (t = 0) für Dosen unterhalb etwa 50 kGy (PMMA und PS) wie folgt formuliert werden [Bic91, Hol89a]:

$$\Delta \mu(D, t) = a \cdot D \cdot f(t) + b \cdot D \qquad (4.1)$$

mit:
$$a = c - b$$

$$c : Anfangsschaden pro Dosis$$

$$b : Endschaden pro Dosis$$

$$f(t) = \begin{cases} 1 & \text{für } t = 0 \\ 0 & \text{für } t > t_E \end{cases}$$

Die Funktion f(t) beschreibt den zeitlichen Verlauf der Schadensänderung im ersten Summanden durch den Einfluß von z.B. Sauerstoff auf die entstandenen Schadenszentren. Der zweite Summand zeigt einen zeitunabhängig konstanten Term, der für den Endschaden steht. Diese Form gilt sowohl für wellenlängenabhängige Absorptionskoeffizienten als auch für über alle Wellenlängen integrierte effektive Absorptionskoeffizienten. Ausführliche Untersuchungen zum zeitlichen Schadensverlauf nach Bestrahlungsende finden sich z.B. in [Neu92, Rie88, Srö89, Sti89, Wic91].

Eine äußerst wichtige Rolle in der Bildung und Sichtbarkeit von Schäden und deren zeitlicher Entwicklung spielt der Sauerstoff. Er zeigt im Zusammenspiel mit ionisierender Strahlung sehr komplexe Verhaltensweisen in Polymeren (vergl. Kapitel 2), die teilweise gegenläufige optisch sichtbare Effekte hervorrufen. Hierzu zählt z.B., daß Sauerstoff während einer Bestrahlung aufgrund seiner hohen Reaktivität derart in Prozesse im Material eingreift, daß nach Bestrahlungsende deutlich höhere Schäden als ohne Sauerstoff beobachtet werden (PMMA: [Sir85]). Auf der anderen Seite sorgt Sauerstoff nach dem Ende einer Bestrahlung für einen teilweise sehr deutlichen Rückgang zusätzlicher Absorptionszentren. Dieser kann durch build up Effekte in der ersten Zeit nach Bestrahlungsende überlagert werden, so daß in der Messung als Summeneffekt zunächst trotzdem ein Schadenswachstum sichtbar wird, das sich erst nach einiger Zeit in einen Schadensrückgang verwandelt. In einigen Fällen ist der build up Effekt zwar vorhanden, kann sich in der Summe aber nicht gegen ein schnelleres Ausheilen durch Sauerstoff

47

durchsetzen, so daß er leicht zu übersehen ist. Bei Fluoreszenzmessungen muß zudem der sogenannte "Sauerstoff-Effekt" [Hor93] berücksichtigt werden: Abhängig von der Konzentration des Sauerstoffs in der Probe ändert sich die Fluoreszenzlichtausbeute.

Weiter kompliziert sich die Schadensentwicklung nach Bestrahlungsende, wenn verschiedende Typen von Absorptionszentren vorliegen, die unterschiedlichen zeitlichen Einflüssen unterliegen.

Die Zeitdauer der optisch meßbaren Veränderungen nach Bestrahlungsende reicht für die Mehrzahl der untersuchten Stoffe von einigen Stunden (Beispiel: 2,6 mm dickes PS, vgl. auch [Tri93]) bis hin zu einigen hundert Tagen (Beispiel: 2 mm dickes PMMA). Der Anfangsschaden verändert sich über build up (PMMA) und Ausheileffekte für eine bestimmte Zeit, bis dann ein zeitlich konstanter Schaden, der Endschaden, übrig bleibt.



Abbildung 4.1: Schematische Darstellung möglicher zeitlicher Schadensverläufe. Die Bestrahlung setzt zur Zeit t_{B0} ein und endet nach verabreichter Gesamtdosis D am Zeitnullpunkt, bis zu dem sich der Anfangsschaden "c" einstellt. Nach möglichem "build up" folgt ein Ausheilen (unter Sauerstoffeinfluß) bis zum Zeitpunkt t_E, zu dem der permanente Endschaden "b" erreicht ist.

Bei Raumtemperatur wurden im Wellenlängenschiebermaterial (Y7 und UV-Absorber in PMMA) und Szintillatormaterial SCSN-38 in Langzeitmessungen keine weiteren Änderungen beobachtet.

Schadenshöhe und -verlauf können neben den qualitativ angedeuteten Effekten zusätzlich vor, während und nach Bestrahlung durch Umgebungsbedingungen beeinflußt werden. Dazu zählen Dosis, Dosisleistung, Atmosphäre und Temperatur [Bic92].

Um diese Effekte zu verstehen, soweit möglich zu trennen und Aussagen über die Verwendbarkeit und das zu erwartende Verhalten polymerer Materialien in Umgebungen mit Strahlungsuntergrund zu treffen, dienen die folgenden Abschnitte. Aufgrund der unterschiedlichen Polymereigenschaften werden PMMA- und PS-basierende Stoffe jeweils in einem eigenen Abschnitt behandelt. Dabei wird ein weitgehend paralleler Aufbau beider Abschnitte angestrebt, um Vergleiche untereinander zu erleichtern.

4.1.2 Schadensbestimmung

Vor der Bestrahlung werden die Materialeigenschaften einer Probe (vgl. Kapitel 3.1) als Basis für die spätere Schadensquantifizierung bestimmt. Sogenannte Referenzproben desselben Materials werden ebenfalls vermessen, aber nicht betrahlt und unter gleichbleibenden Bedingungen (Zimmertemperatur, Luftumgebung, Lichtabschluß) aufbewahrt. Bei Messungen der bestrahlten Proben werden die Referenzproben mitvermessen und dienen zur Überwachung der Reproduzierbarkeit der Meßergebnisse. Nach Bestrahlungsende werden dann erneut die Materialeigenschaften vermessen und durch Vergleich mit den unbestrahlten Meßdaten Schadensberechnungen durchgeführt. Als Schaden ist dabei die Änderung der optischen Materialeigenschaften durch Bestrahlung im Vergleich zu den unbestrahlten Probenparametern zu verstehen (s. Schadensdefinitionen in Gleichungen 3.4 und 3.8).

Der Messung des Anfangsschadens folgen weitere Messungen, die, immer im Vergleich zu unbestrahlten und Referenzproben, die Schadensentwicklung bis zum Endschaden verfolgen.

4.2 Strahlungsstabilität von Wellenlängenschiebern



Ein geeignetes Material zum Transport von Licht verschiedener Wellenlängen stellt Polymethylmethacrylat, kurz PMMA, dar. Der sehr transparente feste Stoff mit Abschwächlängen von einigen Metern und einem Brechungsindex nahe 1,5 transmittiert in Reinform Licht ab etwa 300 nm Wellenlänge. PMMA szintilliert selbst nicht und kann daher nur durch Beimengung anderer Stoffe auch als Szintillator Verwendung finden. PMMA ist einfach und kostengünstig herstellbar und ist mechanisch unproblematisch.

Abbildung 4.2: Differenzen der über alle Fluoreszenzwellenlängen integrierten Absorptionskoeffizienten unmittelbar nach Bestrahlungsende und nach Abschluß der Ausheilung für verschiedene Dosen bei etwa 2,6 kGy/h Dosisleistung. Probenmaterial: PMMA-Basis mit 30 ppm Y7 und 360 nm UVA.

Deshalb werden Materialien auf PMMA-Basis häufig zum Transport optischer Signale auch in Detektoren der Teilchenphysik verwendet.

Sie liegen dort vorwiegend in Plattenform oder als Fasern oder Faserbündel vor.

Bei einfachen Geometrien, in denen PMMA nur als Transportmedium für Licht arbeitet, wird reines PMMA verwendet, dem oft Ultraviolettlicht absorbierende Stoffe (UVA) zugesetzt sind, um das Basismaterial vor schädlichen Einflüssen dieses Lichts zu schützen. Kompliziertere Geometrien verlangen außerdem die Zugabe eines Fluoreszenzfarbstoffes. In Sampling Kalorimetern (vergl. Kapitel 5) sollen z.B. viele Szintillatoren mit einem Lichtleiter ausgelesen werden. Über Änderungen der Lichtverteilung durch Absorption und anschließende wellenlängenverschobene, isotrope Reemission mit einem solchen Farbstoff kann dieses Problem gelöst werden.

Die vorliegende Untersuchung befaßt sich vorwiegend mit PMMA-Lichtleitern, denen Y7 als Fluoreszenzfarbstoff zugesetzt wurde. Frühere Arbeiten ([Hol87, Wic91, Bic91, Zeu93]) haben diesen Fluoreszenzfarbstoff als am besten geeignet zur Kalorimeterauslese des ZEUS-Detektors ermittelt.

4.2.1 Dosisabhängigkeit und Strahlungsquellen

Um deutliche Aussagen bezüglich des Verhaltens von PMMA-Materialien unter Stahlungseinfluß treffen zu können, müssen in Testbestrahlungen meist sehr hohe Dosen verabreicht werden. Diese liegen oft weit über den tatsächlich im Detektor auftretenden Strahlungswerten. Deshalb stellt sich die Frage, inwieweit aus Hochdosisbestrahlungen gewonnene Erkenntnisse

49

auf Schäden aus geringeren Dosen, die in realer Detektorumgebung meist vorliegen, übertragen werden können.

Bei der praktischen Durchführung von Testbestrahlungen können dazu relativ einfach geeignete (d.h. ausreichende hohe Dosisleistung und eine Feldverteilung, die homogene Bestrahlung flächiger Proben erlaubt) γ -Bestrahlungsquellen gefunden werden. Soll hingegen mit z.B. mit Neutronen bestrahlt werden, die in realer Detektorumgebung ebenso zum Strahlungsuntergrund beitragen wie γ -Quanten, so werden Testbestrahlungen deutlich schwieriger. Aus diesem Grunde werden Testreihen meist mit γ -Bestrahlungsquellen durchgeführt.

Zur näheren Untersuchung dieser Problematik wird zunächst auf die Dosisabhängigkeit der Schädigung bei γ -Bestrahlung eingegangen, bevor die Auswirkungen unterschiedlicher Bestrahlungsquellen dikutiert werden.

Dosisabhängigkeit bei y-Bestrahlung

Messungen am Fahrtisch: Es wurden Testbestrahlungen bei unterschiedlichen Dosen an Probenstücken des ZEUS-Wellenlängenschiebermaterials (WLS) vorgenommen. Die experimentellen Daten der Bestrahlung sind:

Strahlungsquelle: 60 Co-Quelle des HMI, Berlin.

Absorbierte Gesamtdosen: 1,0, 2,9, 5,8 und 9,8 kGy (Fehler: 5%).

Dosisleistung: etwa 2,6 kGy/h.

Umgebungsatmosphäre: vor, während und nach der Bestrahlung Luftatmosphäre.

Temperatur: Zimmertemperatur.

Auswertung: ortsabhängige Fluoreszenzanregung mit Meßtisch.

Material: PMMA mit Farbstoff Y7 (30 ppm) und UV-Absorber, der unterhalb 360 nm absorbiert.

Probengeometrie: Platten mit Abmessungen von 200 x 40 x 2 mm³.

Ergebnisse: Mit dem Meßtisch (s. Abschnitt 3.1) wurde das Abschwächverhalten des Fluoreszenzlichtes in der Probe vor, 9 Tage nach (Anfangsschaden) und 517 Tage nach Ende der Bestrahlung (Endschaden) beobachtet. Die Differenz der über alle Emissionswellenlängen integral gemessenen Absorptionskoeffizienten von bestrahlter und unbestrahlter Probe liefert für den Anfangs- und den Endschaden nach Gleichung 3.8 die zusätzliche Absorption $\Delta \overline{\mu}$. Abbildung 4.2 zeigt die Dosisabhängigkeit des Anfangsschadens und des Endschadens. In guter Näherung läßt sich für beide eine Geradenanpassung vornehmen. Die angepaßten Geraden und ihre Steigungen sind in die Abbildung eingezeichnet. In Bezug auf Gleichung 4.1 werden nach Messung mit dem Fahrtisch ohne Monochromator folgende Werte für eine Bestrahlung mit ⁶⁰Co γ -Quanten abgelesen:

$$a_{\text{Tisch},\gamma} = (2,9\pm0,3)\cdot10^{-6}\text{Gy}^{-1}\text{cm}^{-1}$$

$$b_{\text{Tisch},\gamma} = (0,6\pm0,2)\cdot10^{-6}\text{Gy}^{-1}\text{cm}^{-1}$$

$$c_{\text{Tisch},\gamma} = (3,5\pm0,2)\cdot10^{-6}\text{Gy}^{-1}\text{cm}^{-1}$$
(4.2)

Messungen mit Spektralphotometer: Materialien der gleichen Zusammensetzung wurden mit dem Spektralphotometer auf Änderungen ihrer Transmissionseigenschaften untersucht. Das experimentelle Umfeld war hier:

Strahlungsquelle: ** Co-Quellen des HMI, Berlin bzw. Firma Beiersdorf*, Hamburg.

Absorbierte Gesamtdosen: 5,8 kGy, 6,4 kGy, 9,5 kGy und 24 kGy* (Fehler: 5%).

Dosisleistung: etwa 2,2 kGy/h, 0,45 kGy/h und 1-10 kGy/h*.

Umgebungsatmosphäre: Dosis 5,8 kGy: während der Bestrahlung Sauerstoffumgebung (800 hPa), davor und danach Luft; Dosis 6,4 kGy: während der Bestrahlung Argonumgebung (800 hPa), davor und danach Luft; sonst: vor, während und nach der Bestrahlung Luftatmosphäre.

Temperatur: Zimmertemperatur.

Auswertung: Transmissionsmessungen mit Spektralphotometer

- Material: PMMA mit Farbstoff Y7 (30 ppm) und UV-Absorber, der unterhalb 360 nm absorbiert.
- Probengeometrie: Platten unterschiedlicher Fläche von einmal 2,84 mm Dicke (25 kGy) und ca. 2 mm Dicke sonst.

Ergebnisse: Wie bei den Fahrtischmessungen wurden auch hier einige Tage nach Bestrahlungsende (Anfangsschaden) und etwa 400 Tage (Ausnahme 25 kGy: 2462 Tage) nach Bestrahlungsende (Endschaden) wellenlängenabhängig Transmissionen vermessen und daraus monochromatische Absorptionskoeffizienten $\mu(\lambda)$ errechnet. Die Differenzen der Absorptionskoeffizienten bestrahlter Proben zu unbestrahlten liefern die in Tabelle 4.1 aufgelisteten $\Delta\mu(\lambda)$. Die ausgewählten Wellenlängen repräsentieren markante Punkte im Absorptionsspektrum von Y7 (vgl. Abb. 4.17): kurzwelliges "Fenster" des 360 nm UV-Absorbers (290 nm), dessen beginnende Absorption (360 nm und 380 nm), einige Orte im Y7-Absorptionsbereich (390 nm — 460 nm) und einen Ort im Emissionsbereich des Wellenlängenschiebers (510 nm).

Im Rahmen der Meßgenauigkeit ist ein linearer Zusammenhang zwischen erlittener Dosis und zusätzlicher Absorption $\Delta \mu(\lambda)$ zu erkennen. Wie am Fahrtisch werden auch hier Geradenanpassungen für jede Wellenlänge vorgenommen. Die Parameter nach Gleichung 4.1 sind in Tabelle 4.2 zusammengestellt.

An dieser Stelle wäre eine Diskussion der Bedeutung der Schädigungen bei den verschiedenen Wellenlängen möglich. Diese wird aber auf den Abschnitt über UV-Absorber im Wellenlängenschieber verschoben, weil dort zusätzliche Erkenntnisse die Diskussionsgrundlage erweitern.

Dosis- bzw. Flußabhängigkeit bei γ - und Mischfeldbestrahlung

In realer Detektorumgebung liegen neben γ -Strahlung auch Neutronenstrahlungsfelder vor, die Materialschädigungen vergleichbarer Größenordnung bewirken können. In diesem Zusammenhang ist es wichtig zu wissen, inwieweit sich die Schädigung durch Neutronen von der durch γ -Strahlung unterscheidet. So könnten Unterschiede in der Stärke der Schädigung auftreten oder andere Schädigungsformen der optischen Komponenenten z.B. in Gestalt andersartiger

51

Tabelle 41: Monochromatische Schadenswerte $\Delta \mu(\lambda)$ aus Transmissionsmessungen an γ bestrahltem (⁶⁰Co) Wellenlängenschiebermaterial (30 ppm Y7 und 360 nm UV-Absorber in PMMA) unmittelbar nach Bestrahlungsende (Anf.) und nach Ende des Ausheilungsprozesses (End.) für verschiedene Wellenlängen und Strahlungsdosen.

	Dosis		$\Delta \mu(\lambda)(10^{-3} \mathrm{cm}^{-1})$						
	(kGy)	290 nm	360 nm	380 nm	3 90 nm	430 nm	450 nm	460 nm	510 nm
Anf.	5,80 6,40 9,47 25,00	5806 ± 928 5197 ± 806 9233 ± 19	162 ± 226 147 ± 224 436 ± 66	128 ± 52 147 ± 51 294 ± 28	$162 \pm 12 \\ 186 \pm 13 \\ 322 \pm 28 \\ 775 \pm 50$	$157 \pm 35 \\ 166 \pm 32 \\ 303 \pm 38 \\ 775 \pm 50$	87 ± 29 115 ± 26 161 ± 28 450 ± 50	$\begin{array}{r} 46 \pm 29 \\ 77 \pm 32 \\ 95 \pm 28 \\ 300 \pm 50 \end{array}$	$23 \pm 12 \\ 58 \pm 6 \\ 38 \pm 28 \\ 125 \pm 25$
End.	5,80 6,40 9,47 25,00	1798 ± 325 1997 ± 326 3144 ± 19	174 ± 191 -77 ± 192 -28 ± 66 -125 ± 350	23 ± 46 102 ± 45 123 ± 28 275 ± 25	52 ± 12 102 ± 13 114 ± 28 225 ± 25	-6 ± 29 26 ± 32 57 ± 38 225 ± 50	0 ± 23 26 ± 26 -28 ± 28 -38 ± 35	-17 ± 23 26 ± 26 -66 ± 28 75 ± 35	12 ± 6 26 ± 6 9 ± 27 12 ± 10

Tabelle 4.2: Zeitlich veränderliche Schadensparameter $(c(\lambda) \text{ und } (a(\lambda))$ sowie zeitlich konstanter Endschadensparameter $(b(\lambda))$ (nach Gleichung 4.1) aus Transmissionsmessungen an γ bestrahlten Wellenlängenschiebern (30 ppm Y7 und 360 nm UV-Absorber in PMMA) für verschiedene Wellenlängen und Strahlungsdosen.

		Schadensparameter(λ)(10 ⁻⁶ Gy ⁻¹ cm ⁻¹)											
	290 nm	360 nm	380 nm	390 nm	430 nm	450 nm	460 nm	510 nm					
$c_{\gamma}(\lambda)$ $\mathbf{a}_{\gamma}(\lambda)$ $\mathbf{b}_{\gamma}(\lambda)$	674,9 ± 2,0 343,0 ± 2,8 331,9 ± 2,0	$44,6 \pm 6,7$ $49,2 \pm 9,0$ $-4,6 \pm 6,0$	29,4 ± 2,6 18,2 ± 2,8 11,2 ± 0,9	30,0 ± 1,0 20,0 ± 1,3 10,0 ± 0,8	30,4±1,6 23,4±2,3 7,0±1,6	$17,5 \pm 1,5$ $18,7 \pm 1,9$ $-1,2 \pm 1,2$	11,1 ± 1,5 10,0 ± 1,9 1,1 ± 1,2	6,7±0,6 5,6±0,7 1,1±0,3					

Absorptionszentren vorkommen. Aus diesem Grunde sollen in diesem Abschnitt die Untersuchungen von γ -bestrahlten Stoffen mit Ergebnissen neutronenbestrahlter Materialien verglichen werden.

Experiment: Im Kern des 1 MW Forschungsreaktors FRG 1 des GKSS in Geesthacht wurden Probenstücke mit verschiedenen Dosen bzw. Neutronenflüssen bestrahlt¹. Hierzu wurden die Proben in beschwerten Aluminiumbehältern im Kernbereich des Reaktors in das mit Wasser gefüllte Reaktorbecken gesenkt. Beigelegte Alaninstückchen dienten der Dosimetrie. Nähere Details zum experimentellen Umfeld können [Buß94] entnommen werden, die wesentlichen Daten sind:

Strahlungsquelle: 5 MW Forschungsreaktor FRG1 des GKSS Geesthacht.

Strahlungsfeld: Neutronenflüsse für thermische (n-Energie < 0,5 eV), epithermische (0,5 eV < n-Energie < 10 keV) und schnelle (n-Energie > 10 keV) Neutronen:

$$\begin{split} \Phi_{\text{therm}} &= 1, 19 \cdot 10^{13} \,\text{n s}^{-1} \,\text{cm}^{-2}, \\ \Phi_{\text{epi}} &= 2, 20 \cdot 10^{11} \,\text{n s}^{-1} \,\text{cm}^{-2}, \\ \Phi_{\text{schnell}} &= 2, 97 \cdot 10^{12} \,\text{n s}^{-1} \,\text{cm}^{-2}. \end{split}$$

$$(4.3)$$

In diesem Strahlungsfeld wurden vier Bestrahlungszeiten gewählt: 8 s, 42 s, 84 s und 420 s. Es lag außerdem ein hoher γ -Untergrund mit einer Dosisleistung von etwa 194 Gy/s vor, wie Messungen des mitbestrahlten Alanins ergaben.

Umgebungsatmosphäre: Vor, während und nach der Bestrahlung Luftatmosphäre.

Temperatur: Vor und nach Bestrahlung Zimmertemperatur, während der Bestrahlung in Aluminiumbehälter in 45 °C warmes Wasser des Reaktorbeckens getaucht.

Auswertung: Transmissionsmessungen mit Spektralphotometer.

Material: PMMA mit Farbstoff Y7 (30 ppm) und UV-Absorber, der unterhalb 360 nm absorbiert.

Probengeometrie: Plättchen 10 x 10 x 2 mm³.

Dosimetrie: Ein besonderes Problem bei der Bewertung der Meßergebnisse stellt der hohe γ -Untergrund neben dem Neutronenfluß dar. Zwar konnten die Neutronenflüsse vom GKSS mit einer Neutronenflußmeßlanze am Bestrahlungsort bestimmt werden, aber direkte Informationen zum γ -Feld waren nicht verfügbar. Aus diesem Grunde wurden Alanindosimeter mitbestrahlt, mit deren Hilfe sich der γ -Untergrund abschätzen läßt.

Die mittels ESR (vgl. 3.3) gewonnene Alanin-Dosisinformation $(D_{ala,mel})$ setzt sich zusammen aus den Anteilen der Neutronenäquivalentdosis $(D_{ala,n,mel})$ und des γ -Untergrundes $(D_{ala,\gamma,mel})$:

$$D_{\text{ala,meff}} = D_{\text{ala,n,meff}} + D_{\text{ala,\gamma,meff}}$$
(4.4)

Die γ -Äquivalentdosis der Neutronenstrahlung läßt sich bei bekanntem Energiespektrum aus den Wirkungsquerschnitten der im Material enthaltenen Stoffe über KERMA-Faktoren (KER-MA: "Kinetic Energy Released in MAterial") berechnen [Att86]. Dabei muß berücksichtigt werden, daß bei der Bestrahlung des Alanins mit schnellen Neutronen (~ 1 MeV) die Energie des Neutrons hauptsächlich durch Rückstoßprotonen über elastische Streuung an den Wasserstoffatomen des Alanins übertragen wird. Aufgrund des dabei hohen linearen Energietransfers (LET, "linear energy transfer") werden im Vergleich zu γ -Strahlung deutlich weniger Radikale gebildet: Die relative Empfindlichkeit für schnelle Neutronen in Bezug auf γ -Strahlung beträgt etwa $G_n/G_\gamma \approx 0.5$ [Kat86]. Bei Berücksichtigung dieses Aspekts ist die vom Alanin gemessene Dosis eine Summe aus den Dosen bzw. Äquivalentdosen des γ -Untergrundes, der thermischen Neutronen ($D_{als,n-therm,KERMA}$) und der schnellen Neutronen ($D_{als,n-schnell,KERMA}$):

$$D_{\text{ala,me8}} = D_{\text{ala,}\gamma,\text{me8}} + D_{\text{ala,n-therm,KERMA}} + 0, 5 \cdot D_{\text{ala,n-schnell,KERMA}}$$
(4.5)

Die Vereinfachung liegt darin, das (unbekannte) Energiespektrum der Reaktorneutronen auf schnelle Neutronen von 1 MeV und thermische Neutronen zu reduzieren.

¹Mit freundlicher Unterstützung durch Herrn U. Geyer, GKSS Geesthacht

53

Bemerkung 1 (Bestimmung des γ -Untergrundes der Mischfeldbestrahlung) In Einzelschritten werden die Beiträge der beiden Neutronenenergien und dazu gehörenden wichtigsten Wechselwirkungsarten zum gemessenen Alaninsignal berechnet.

Die in einem Material (Z) durch den integrierten Neutronenfluß (Flächendichte der Neutronen) Φ freigesetzte kinetische Energie K (KERMA) ist für monoenergetische Neutronen (Energie E) nach [Att86]:

$$D \stackrel{cps}{=} K = \Phi \cdot (F_n)_{E,Z}, \text{ mit dem Neutronen-KERMA-Faktor}$$

$$F_n = 1,602 \cdot 10^{-10} \frac{g \cdot Gy}{MeV} \sigma \frac{N_t}{m} E_{tr},$$
mit

D : Dosis, ist im Falle des Gleichgewichts geladener Teilchen (CPE: Charged Particle Equilibrium) gleich der KERMA,

- σ : Wechselwirkungsquerschnitt,
- $\frac{N_t}{m}$: Anzahl Targetatome pro Masseneinheit,
- E_{tr} : an geladene Teilchen übergebene kinetische Gesamtenergie pro Wechselwirkung.

Das vorliegende Dosimeter besteht zu 2/3 aus DL-a-Alanin und zu 1/3 aus EPR (Massenanleile). Mit den Molmassen aus Tabelle 4.3 ist eine Berechnung der Targetatome pro Masseneinheit

Tabelle 4.3: Zusammensetzung	von DL-a-Alanin ($(CH_3-CH(NH_2)-COOH).$
------------------------------	-------------------	-------------------------

Element E	Molmasse Element m _{mol,E} (g/mol)	Anzahl Elemente in Alanin n _E	Molmasse in Alanin m _{mol,E,ala} (g/mol)	$\left(\frac{N_{i}}{m}\right)_{E}$ $(10^{22} g^{-1})$
С	12,01	3	36,03	2,028
H	1,008	7	7,06	4,731
N	14,01	1	14,01	0,676
0	16,00	2	32,00	1,352
Molmasse	Alanin m _{mol,ala} :		89,10	

N_t/m des Elements E möglich:

1.

a) Neutroneneinfang ${}^{1}H(n, \gamma) {}^{2}H$

$$\sigma_{H} = 3, 32 \cdot 10^{-25} \text{ cm}^{2}$$

$$\left(\frac{N_{i}}{m}\right)_{H} = 4, 731 \cdot 10^{22} g^{-1}$$

$$E_{tr,H} = 2, 2 Me V \cdot \left(1 - e^{-\mu r_{e} \cdot x}\right)$$

$$mit$$

$$\mu_{en} = \frac{\mu_{en}}{\rho} \cdot \rho,$$

$$\frac{\mu_{en}}{\rho} : Massenabsorptionskoeffizient. \approx 0.025 \text{ cm}^{2} g^{-1}$$

$$f \tilde{u} r \gamma \cdot Quanten in Alanin$$

$$\rho : Dichte = 1, 06 \text{ g cm}^{-3},$$

$$x : Materialdicke = 0, 48 \text{ cm}.$$

Somit folgt:

$$F_{n,H}^{therm} = -7, 0 \cdot 10^{-14} \ Gy \ cm^2$$
(4.8)

b) ¹⁴N(n,p) ¹⁴C

$$\sigma_N = 1,84 \cdot 10^{-24} \ cm^2$$

$$\left(\frac{N_t}{m}\right)_N = \frac{2}{3} \cdot 6,759 \cdot 10^{21} \ g^{-1}$$

$$E_{tr,N} = 0,5 \cdot 0,62 \ MeV$$

Somit folgt:

$$F_{n,N}^{therm} = 4, 1 \cdot 10^{-13} \; Gy \, cm^2 \tag{4.9}$$

Der Faktor $\frac{2}{3}$ in der Berechnung von $(N_t/m)_N$ resultiert aus der Zusammensetzung des Alanin-Dosimeters: Zu 1/3 besteht es aus EPR (Ethylene Propylene-Rubber) ohne N, zu 2/3 aus DL- α -Alanin, in dem N enthalten ist. Der Faktor 0,5 in der Berechnung des $E_{tr,N}$ trägt dem hohen LET der 0,62 MeV Protonen Rechnung. Dabei wird wieder eine relative Empfindlichkeit des Alanins von 0,5 auf die Protonen bezüglich γ -Strahlung angenommen.

Die Summe beider KERMA-Faktoren aus a) und b) ergibt den effektiven Neutronen-KERMA-Faktor für alle (wesentlichen) Beiträge thermischer Neutronen:

$$F_n^{\text{therm}} = 4,8 \cdot 10^{-13} \, \text{Gy} \, \text{cm}^2 \tag{4.10}$$

2. Schnelle Neutronen Die Neutronen KERMA-Faktoren für schnelle Neutronen können, wie zuvor geschehen, mit Wirkungsquerschnitten abgeschätzt oder direkt aus Tabellen (z.B. [Att86]) abgelesen werden. Letztere Methode sei für die schnellen Neutronen angewandt, wobei allerdings kein Tabelleneintrag für Alanin selbst zu finden war, sondern vielmehr aus den KERMA-Faktoren für die im Alanin enthaltenen Einzelatome zu bilden ist. Dies geschieht durch Multiplikation der relativen Molmassen der Einzelatome in Alanin an die tabellierten Rein-KERMA-Faktoren. Diese lauten:

$$\begin{split} F_n^{ichnell}(C_{rein}) &= 2,84 \cdot 10^{-12} \ Gy \ cm^2, \\ F_n^{ichnell}(H_{rein}) &= 2,09 \cdot 10^{-10} \ Gy \ cm^2, \\ F_n^{ichnell}(N_{rein}) &= 2,02 \cdot 10^{-12} \ Gy \ cm^2, \\ F_n^{ichnell}(O_{rein}) &= 4,22 \cdot 10^{-12} \ Gy \ cm^2, \end{split}$$

Der KERMA-Faktor in Alanin für jeden dieser Stoffe "i" berechnet sich aus:

$$F_{n}^{schnell}(i_{ala}) = \frac{n_{1,ala} \cdot m_{mol,i,ala}}{m_{mol,ala}} \cdot F_{n}(i_{rein}).$$
Damit folgt:

$$F_{n}^{schnell}(C_{ala}) = 1,15 \cdot 10^{-12} \ Gy \ cm^{2},$$

$$F_{n}^{schnell}(H_{ala}) = 1,66 \cdot 10^{-11} \ Gy \ cm^{2},$$

$$F_{n}^{schnell}(N_{ala}) = 3,18 \cdot 10^{-13} \ Gy \ cm^{2},$$

$$F_{n}^{schnell}(O_{ala}) = 1,52 \cdot 10^{-12} \ Gy \ cm^{2},$$

$$Gesamt: F_{n}^{schnell} = 1,95 \cdot 10^{-11} \ Gy \ cm^{2}.$$
(4.11)

Der Neutronen-KERMA-Faktor für Alanin ergibt sich als Summe der Einzelfaktoren.

Mit den Gleichungen 4.5 und 4.6 erhält man wegen der Ähnlichkeit des chemischen Aufbaus von Alanin und PMMA die Dosisleistung des γ -Untergrundes:

$$D_{\text{als},\gamma,\text{me8}} = \hat{D}_{\text{PMMA},\gamma} = \hat{D}_{\text{als},\text{me8}} - F_n^{\text{therm}} \cdot \hat{\Phi}_{\text{therm}} - 0, 5 \cdot F_n^{\text{schnell}} \cdot \hat{\Phi}_{\text{schnell}}$$
(4.12)

Mit den Neutronenflüssen (Gl. 4.3) und den Neutronen-KERMA-Faktoren für thermische und schnelle Neutronen (Gl. 4.10 und 4.11) sowie der gemessenen Alanin-Dosisinformation 228 Gy s⁻¹ erhält man die γ -Dosisleistung:

$$D_{\rm PMMA,\gamma} = 194 \,\rm Gy\,s^{-1}. \tag{4.13}$$

Leider ist diese Dosisleistung mit großer Unsicherheit behaftet. Dazu tragen die Ungenauigkeit der Bestrahlungsdauer (Absenken der Probe an einem Faden im mit Wasser gefüllten Reaktorbecken) von bis zu 20 % und bei der Trennung der Anteile von γ - und Neutronenstrahlung das unbekannte Energiespektrum der Neutronen bei.

Die Gesamtdosisleistung in PMMA läßt sich mit den KERMA-Faktoren für thermische und schnelle Neutronen aus der Literatur, z.B. (Att86) oder — wie oben gezeigt über Wirkungsquerschnitte — ermitteln:

$$F_{n}^{\text{therm}}(\text{PMMA}) = 5,66 \cdot 10^{-12} \text{ Gy cm}^{2} \cdot (1 - e^{-\mu \cdot s}),$$

$$F_{n}^{\text{schnell}}(\text{PMMA}) = 2,00 \cdot 10^{-11} \text{ Gy cm}^{2},$$

$$\dot{D}_{\text{PMMA,gesamt}} = F_{n}^{\text{therm}}(\text{PMMA}) \cdot \dot{\Phi}_{\text{therm}} + F_{n}^{\text{schnell}}(\text{PMMA}) \cdot \dot{\Phi}_{\text{schnell}} + \dot{D}_{\text{PMMA},\gamma},$$

$$= 3 \text{ Gy s}^{-1} + 59 \text{ Gy s}^{-1} + 194 \text{ Gy s}^{-1} = 256 \text{ Gy s}^{-1}.$$
(4.14)

Ergebnisse: Würden bei der Neutronenbestrahlung des Wellenlängenschiebermaterials keine anderen Schädigungen oder Effekte als bei den in der Vergangenheit durchgeführeten γ -Bestrahlungen auftreten, so müßten die spektralen Verläufe der zusätzlichen Absorptionskoeffizienten ($\Delta\mu(\lambda)$) für beide Fälle übereinstimmen und die Schadenshöhen pro absorbierter Dosiseinheit ebenfalls gleich sein.

Die spektralen Verläufe der $\Delta \mu(\lambda)$ zeigt Abbildung 4.3. Der relativ niedrigere Anfangsschaden der Neutronenmischfeldbestrahlung ist möglicherweise auf eine erhöhte Temperatur während der Bestrahlung zurückzuführen. Die Formen der Kurven stimmen im Rahmen der Fehler sonst sehr gut überein, so daß hieraus kein Anhaltspunkt für neuartige durch Neutronen hervorgerufene Schäden besteht.



In der Schadenshöhe ist aufgrund des höheren LET für den Anteil schneller Neutronen möglicherweise eine andere Empfindlichkeit zu erwarten. Ob dies in den Messungen nachzuweisen ist, soll die folgende quantitative Auswertung der Schäden zeigen. Tabelle 4.4 stellt für die vier verschiedenen Bestrahlungsdauern und acht charakteristischen Wellenlängen alle Anfangs- und Endschäden $\Delta \mu(\lambda)$ zusammen.

Abbildung 4.3: Vergleich der spektralen Anfangs- (Kurvenpaar mit höheren Schadenswerten) und Endschäden für γ - und mischfeldbestrahlte Wellenlängenschieber. γ -Strahlungsdosis (durchgezogene Kurven): 5,5 kGy; Neutronenbestrahlungsdauer: 42 s im Reaktormischfeld (Flüsse und Dosen s. Text, gepunktete Kurven).

Der Anfangsschaden pro Bestrahlungsdauer liegt für die höchste Bestrahlungsdauer deutlich unter den Werten für die drei niedrigeren Bestrahlungsdauern. Eine Erklärung

hierfür wären Sättigungseffekte im Material oder ein weiter vorangeschrittenes Ausheilstadium aufgrund erhöhter Materialtemperatur. Für ein temperaturbedingtes vorzeitiges Ausheilen spricht die Tatsache, daß der Endschaden bis zur höchsten Bestrahlungsdauer proportional zu dieser ist. Die linearen Fits (Verfahren wie bei Tabelle 4.2) an die Bestrahlungszeitabhängigkeit des Anfangsschadens erfolgen deshalb nur an die ersten drei Bestrahlungsdauern. Das Ergebnis zeigt Tabelle 4.5.

Dividiert man die Schadensparameter $c(\lambda)$ und $b(\lambda)$ der Neutronenmischfeldbestrahlung durch die Parameter der γ -Bestrahlung, so erhält man die Äquivalentdosisleistung hierzu in (Gy/s). Weil mögliche LET-Effekte, die zu einer verringerten Empfindlichkeit des Wellenlängenschiebers gegenüber schnellen Neutronen führen können, in den Meßwerten nicht berücksichtigt sind, ist es besser, von einer "scheinbaren Äquivalentdosisleistung"² zu sprechen. Tabelle 4.6 stellt die Werte vor.

Leider sind die statistischen und systematischen Fehler der γ - und Mischfeldbestrahlungen so hoch, daß eine Aussage bezüglich veränderter Empfindlichkeit des Wellenlängenschiebermaterials gegenüber Neutronenbestrahlung nicht möglich ist. Die Anfangsschäden lassen sich

55

²Mit "scheinbarer Äquivalentdosis" von Neutronen ist in dieser Arbeit die Strahlungsdosis gemeint, die im betrachteten Material den gleichen Effekt ($\Delta \mu$) hervorruft, wie eine entsprechende ⁶⁰Co γ -Strahlungsdosis.

57

Tabelle 4.4: Monochromatische Schadenswerte $\Delta \mu(\lambda)$ aus Transmissionsmessungen an neutronen-bestrahltem Y7 unmittelbar nach Bestrahlungsende (Anf.) und nach Ende des Ausheilungsprozesses (End.) für verschiedene Wellenlängen und Bestrahlungsdauern.

	Dauer		$\Delta \mu(\lambda)(10^{-3} \mathrm{cm}^{-1})$							
	(s)	290 nm	360 nm	380 nm	390 nm	430 nm	450 nm	460 nm	510nm	
Anf	8 12 84	1167±281 4986±493 9708±784	79 ± 185 346 ± 187 666 ± 123	12 ± 45 140 ± 45 330 ± 29	21 ± 11 139 ± 11 346 ± 7	5 ± 27 121 ± 27 322 ± 18	12 ± 22 80 ± 22 218 ± 14	14 ± 25 60 ± 25 162 ± 16	9 ± 8 23 ± 8 61 ± 5	
End.	420 8 42 84 42 84 420	433 ± 258 1755 ± 296 3701 ± 251	-89 ± 182 -166 ± 181 -279 ± 115 -384 ± 248	-29 ± 45 14 ± 44 101 ± 29 432 ± 64	-1 ± 11 51 ± 11 120 ± 7 429 ± 17	-16 ± 27 -1 ± 27 -16 ± 17 49 ± 39	-13 ± 22 -3 ± 22 -18 ± 14 23 ± 31	$21 \pm 25 \\ 20 \pm 25 \\ -3 \pm 16 \\ 23 \pm 35$	5± 8 10± 8 7± 5 96±11	

Tabelle 4.5: Schadensparameter $(c(\lambda), (a(\lambda)))$ und $(b(\lambda))$ (nach Gleichung 4.1) aus Transmissionsmessungen an neutronenbestrahlten Wellenlängenschiebern (30 ppm Y7 und 360 nm UV-Absorber in PMMA) für verschiedene Wellenlängen und Bestrahlungszeiten.

-		Schadensparameter(λ)(10 ⁻³ s ⁻¹ cm ⁻¹)								
		290 nm	360 nm	380 nm	390 nm	430 nm	450 nm	460 nm	510 nm	
-	$c_n(\lambda)$ $a_n(\lambda)$ $b_n(\lambda)$	118,0 ± 7,0 74,2 ± 7,5 43,8 ± 2,7	$8,0 \pm 1,4$ $9,3 \pm 1,5$ $-1,4 \pm 0,5$	3,9±0,3 2,8±0,4 1,0±0,1	4,0±0,1 2,9±0,1 1,1±0,0	3,7±0,2 3,7±0,2 0,1±0,1	$2,5 \pm 0,2 \\ 2,5 \pm 0,2 \\ 0,0 \pm 0,1$	1,9±0,2 1,8±0,2 0,0±0,1	0,7±0,1 0,5±0,1 0,2±0,1	

zwar bei allen Wellenlängen gut bestimmen, werden aber aufgrund der wahrscheinlich erhöhten Temperatur während der Bestrahlung und des damit verbundenen beschleunigten Ausheilens

Tabelle 4.6: Berechnete scheinbare γ -Âquivalentdosis des Mischfeldes der γ - und Neutronenstrahlung aus den Quotienten der Schadensparameter c_{γ} und c_n sowie b_{γ} und b_n von γ - und Mischfeldbestrahlung (Tabellen 4.2 bzw. 4.5) für Wellenlängenschiebermaterial (30 ppm Y7 und 360 nm UV-Absorber in PMMA).

	scheinbare Äquivalentdosisleistung(λ)(Gy s ⁻¹)								
	290 nm	360 nm	380 nm	390 nm	430 nm	450 nm	460 nm	510 nm	
c#/c7 b#/b7	175 ± 10 132 ± 8	178 ± 41 296 ± 403	131 ± 16 93 ± 15	135 ± 5 110 ± 10	123 ± 9 9 ± 12	145 ± 15 -8 ± 51	169 ± 28 36 ± 83	106 ± 13 191 ± 55	

generell zu niedrig. Bei den Endschadenswerten sind die Meßfehler so groß, so daß keine Bewertung möglich ist. Sollen eindeutige Aussagen möglich werden, so müssen der relative Anteil der Neutronenstrahlung am Gesamtstrahlungsfeld deutlich erhöht werden, ein zuverlässigeres γ -Datenmaterial zur Verfügung stehen und die Temperatur der Proben während der Bestrahlung überwacht werden und auf dem Niveau der γ -Bestrahlungstemperatur angesiedelt sein.

Somit läßt sich im Rahmen der — leider recht großen — Fehler zusammenfassen, daß γ und mit gleicher Dosis neutronenbestrahlte Wellenlängenschieber keine Unterschiede in ihrem optischen Verhalten erkennen lassen.

Farbstoffzerstörung

Durch Bestrahlung erfährt das Wellenlängenschiebermaterial neben der Entstehung zusätzlicher Absorptionszentren, die die Lichtausbreitung hemmen, auch Zerstörungen des Fluoreszenzfarbstoffs. In den Abbildungen 4.3 und 4.4 ergeben sich im Wellenlängenbereich von 420 nm bis 480 nm negative zusätzliche Absorptionskoeffizienten $\Delta\mu(\lambda)$ für den permanenten Endschaden. Da beiden Seiten dieses Wellenlängenintervalls von positiven $\Delta\mu(\lambda)$ flankiert werden, kann man annehmen, daß zusätzliche Absorptionszentren den Bereich der Absorption des Y7 überlagern. Soll die relative Anzahl zerstörter Y7-Farbstoffe q_{trans} korrekt abgeschätzt werden, müssen die Anteile positiver $\Delta\mu_+(\lambda)$ im interessierenden Wellenlängenintervall vom gemessenen $\Delta\mu(\lambda)$ subtrahiert und die Differenz $\Delta\mu_-(\lambda) = \Delta\mu(\lambda) - \Delta\mu_+(\lambda)$ durch den Absorptionskoeffizienten der unbestrahlten Probe ($\mu_0(\lambda)$) dividiert werden. Bei Gültigkeit des Beerschen Gesetzes, das einen linearen Zusammenhang zwischen der Anzahl vorhandener Absorptionszentren und dem exponentiellen Absorptionskoeffizienten beschreibt, liefert der Quotient die relative Zahl zerstörter Farbstoffe:

$$q_{\text{trans}} = \frac{\Delta \mu_{-}(\lambda)}{\mu_{0}(\lambda)}.$$
(4.15)

Der Vergleich der permanenten Endschäden von PMMA ohne Zusätze (GS 218 der Firma Röhm) mit dem Wellenlängenschiebermaterial, das den Farbstoff Y7 und einen unterhalb 360 nm absorbierenden UV-Absorber enthält, kann nicht zur Abschätzung des positiven Schadensanteils $\Delta \mu_+(\lambda)$ herangezogen werden.

Abbildung 4.4 zeigt diesen Schadensvergleich zweier unter identischen Bedingungen bestrahlten Proben im Zustand des permanenten Endschadens. Bei annähernd vergleichbaren Schädigungen um 290 nm zeigen sich um 390 nm und 480 nm deutlich höhere Schädigungen im Wellenlängenschiebermaterial. Diese können möglicherweise auf Bestrahlungsfolgeprodukte des Farbstoffs Y7 oder des UV-Absorbers zurückgeführt werden. In jedem Falle kann GS 218 aufgrund dieser Überlagerung weiterer Effekte nicht allein als Maß für die Zahl zusätzlicher Absorptionszentren $\Delta \mu_+(\lambda)$ im Wellenlängenschieber gebraucht werden. Eine Abschätzung der "relativen Tiefe" des Wellenlängenbereichs um die Y7-Absorption (um 450 nm) bezüglich der Höhe der flankierenden positiven $\Delta \mu(\lambda)$ (um 390 nm) allein aus der Kurve des Wellenlängenschiebers kann dennoch einen ungefähren Eindruck von der Zahl zerstörter Farbstoffe q_{trans} vermitteln:

$$q_{\text{trans}} \approx \frac{\overline{\mu}(\lambda \text{ um } 390 \text{ nm}) - \overline{\mu}(\lambda \text{ um } 450 \text{ nm})}{\overline{\mu}_0(\lambda \text{ um } 450 \text{ nm})}. \tag{4.16}$$

Tabelle 4.7 stellt auf diese Weise abgeschätzte Werte für die in den vorigen Abschnitten geschilderten γ - und Reaktor-Mischfeldbestrahlungen zusammen.

Tabelle 4.7: Auswirkung verschiedener Strahlungsarten und -dosen auf das Fluoreszenzverhalten des Wellenlängenschieberfarbstoffs Y7 in PMMA mit 360 nm UV-Absorber (Erläuterungen s. Text).

	Reaktor-Mischfeld Bestrahlungsdosis (kGy)				γ-Dosis (kGy)			
	2,0	10,7	21,5	107	5,8	6,4	9,47	24,0
$\Delta \mu_{-} (10^{-2} \mathrm{cm}^{-1})$	2 ±3	6 ± 3	14 ±3	42 ±4	7 ± 3	8 ±3	17 ±4	30 ± 10
$q_{\text{trans}} \approx \Delta \mu / \mu_0 (\%)$ $q_{\text{trans}} / D (10^{-3} / \text{kGy})$	0,5±0,7 2,5±4	1,4±0,7 1,3±0,7	3,3±0,7 1,5±0,3	10 ±1 0,9±0,1	1,7±0,7 2,9±1.2	$1,9 \pm 0,7$ $3,0 \pm 1,1$	4,0 ± 1,0 4,2 ± 1,1	7 ± 2 2.9 ± 0.8
In,b//n,0 (%)	•		95 ±1	89 ±1	98 ± 1	98 ±1		· · · ·
$q_{\rm fl}\approx 1-I_{\rm fl,b}/I_{\rm fl,0}(\%)$	-		5 ±1	11 ±1	2 ± 2	2 ±2		
qn/D (10-3/kGy)	-	-	2,3 ± 0,5	1,1±0,1	3 ± 3	3 ±3	•	-

Einen weiteren möglichen Weg zur Abschätzung der Zahl zerstörter Farbstoffe liefert das Verhältnis von Fluoreszenzintensitäten bestrahlter $(I_{0,b})$ und unbestrahlter $(I_{0,0})$ Proben, die mit streifender Anregung in Reflexion (s. Abb. 4.16) bestimmt werden können. Allerdings gilt nur dann ein näherungsweise linearer Zusammenhang zwischen diesem Verhältnis und der Zahl zerstörter Farbstoffe, wenn das anregende Licht beim Durchgang durch das als plattenförmig angenommene Material nicht zu stark geschwächt wird. Für Einzelheiten des Zusammenhanges von Farbstoffkonzentration und Fluoreszenzlichtausbeute s. Anhang A.1. Die Verhältnisse der Fluoreszenzintensitäten der im Reaktor-Mischfeld bestrahlten Wellenlängenschieber finden sich zusammen mit den Zahlen aus Transmissionsmessungen in Tabelle 4.7.

Für den Einfluß auf das ZEUS-Kalorimeter ist nicht die Zahl der zerstörten Farbstoffmoleküle q_{trans} sondern die strahlungsbedingte Reduktion der Fluoreszenzausbeute ga maßgebend. Aufgrund der exponentiellen Abschwächung des anregenden Lichtes im Material ändert sich die Fluoreszenzlichtausbeute nicht proportional mit der Zahl der durch Bestrahlung zerstörten Farbstoffe (s. Anhang A.1). Deshalb ist gtrane etwas größer als die resultierende Ausbeutenverminderung. bestrahlungsbedingten siven Absorptionszentren im



hang A.1). Deshalb ist q_{tran} etwas größer als die resultierende Ausbeutenverminderung. Andererseits absorbieren die bestrahlungsbedingten pas-Abbildung 4.4: Vergleich der permanenten Endschäden zweier Proben aus Wellenlängenschiebermaterial (PMMA mit 30 ppm Y7 und 360 nm UVA, durchgezogene Kurven) und reinem PMMA (GS 218, gestrichelt). Bestrahlung: 420 s im Reaktor-Mischfeld (s.o.).

Bereich der Farbstoffabsorption um 450 nm anregende Lichtanteile, die in der Fluoreszenzaus-

beute fehlen. Letzteres bewirkt also einen größeren Fluoreszenzlichtrückgang, als durch reine Farbstoffzerstörung hervorgerufen würde. Dennoch ist q_{trans} eine im Rahmen der Meßfehler recht brauchbare Abschätzung der strahlungsbedingten Fluoreszenzlichtverminderung. Eine direkte Bestimmung des Rückgangs der Fluoreszenzausbeute erlaubt die Messung des Fluoreszenzlichtes in Reflexion und daraus resultierende Zahl q_6 . Allerdings sind hier die Anzahl der vermessenen Proben geringer als bei den Transmissionsmessungen und die Meßfehler größer.

Zusammenfassend wird als effektive relative Fluoreszenzlichtverminderung durch Bestrahlung des Wellenlängenschiebers (30 ppm Y7 in PMMA mit 360 nm UV-Absorber) pro absorbierter Strahlungsdosis D im betrachteten Dosisbereich (ca. 2 – 100 kGy) angegeben:

$$\left(\frac{I_{\rm fl,b}}{I_{\rm fl,0}}\right)_{WLS}(D) = 1 - (3 \pm 1) \cdot 10^{-6} \,\,{\rm Gy^{-1}} \cdot D. \tag{4.17}$$

4.2.2 Wellenlängenschieber mit verschiedenen UV-Absorbern

Die Aufgabe der Ultraviolettlicht-Absorber (kurz: UV-Absorber oder UVA) im Polymethylmetacrylat ist es, ab einer Grenzwellenlänge kurzwelligere Lichtanteile nahezu vollständig zu absorbieren (die Abschwächlängen für UV-Licht unterhalb dieser Grenze sind deutlich kleiner als 0,1 mm). Damit wird das ultraviolette Licht, das sonst die PMMA-Matrix angreift und Materialschädigungen verursacht (vergl. Kapitel 2), vom PMMA ferngehalten.

Neben der Materialschutzfunktion kommt dem UVA insbesondere bei Benutzung in Kalorimetern eine weitere Bedeutung zu. Das sich in ähnlichen Wellenlängenbereichen ausbreitende Čerenkovlicht wird stark unterdrückt. Bei der Energiemessung über Szintillationslichtstärken in Sandwich-Kalorimetern (vergl. Kapitel 5) könnten in Wellenlängenschiebern ohne UVA fehlerhafte Ergebnisse die Folge sein: Hochenergetische Teilchen, die durch die Lichtleiter dringen, erzeugen Čerenkovlicht, das dem eigentlichen Szintillationslicht überlagert ist und die Energiemessung verfälscht (vergl. [Dan90a]).

Beide Aufgaben des UV-Absorbers verlangen also ein Einsetzen der Absorption bei möglichst großen Wellenlängen. Dieses kollidiert in einem Kalorimeter aber mit der Tatsache, daß auch das Szintillatorlicht, welches vom Fluoreszenzfarbstoff im PMMA aufgenommen werden soll, meist im Bereich blauer Wellenlängen liegt. Außerdem darf der Lichttransport des Fluoreszenzlichtes im WLS nicht durch den UVA gestört werden, da bei Lichttransportwegen von bis zu 2 m sonst starke Intensitätseinbußen die Folge wären.

Um einen geeigneten UV-Absorber für einen PMMA Lichtleiter zu finden, muß bekannt sein, welche Lichtwellenlängen vom Lichtleiter über welche Entfernungen zu transportieren sind.

Im vorliegenden Fall soll PMMA-Material in Plattengeometrie (2 mm dick, 50 mm bzw. 200 mm breit und bis zu 2000 mm lang) blaues Licht aus einem SCSN-38 Szintillator aufnehmen und dieses wellenlängenverschoben als grünes Licht zur Auslese (Photomultiplier) transportieren. Dazu ist Y7 als Fluoreszenzfarbstoff dem PMMA beigegeben [Kmn83]. Der Lichtweg entspricht damit der in Kapitel 5 angesprochenen optischen Auslese des ZEUS-Kalorimeters. Das Emissionspektrum des vom Szintillator übergebenen blauen Lichts reicht von etwa 360 nm bis zu 550 nm (vergl. Abb. 3.5b), was gut mit dem Absorptionsspektrum des im PMMA enthaltenen Wellenlängenschieberfarbstoffs Y7 übereinstimmt (vergl. Abb. 4.7). Ein auszuwählender UV-Absorber sollte also keine Wellenlängen größer als etwa 400 nm absorbieren, um das Szintillator-Lichtsignal nicht abzuschwächen oder gar völlig wegzuschneiden, bevor es vom Farbstoff Y7 absorbiert werden kann.



Abbildung 4.5: Transmissionspektren der vier untersuchten UV Absorber. Die Zahlen bezeichnen die Abschneidewellenlängen. Berechnet für 2 mm dicke Proben aus Vergleichen der Absorptionskoeffizienten von Wellenlängenschieberproben (30 ppm Y7 in PMMA) mit und ohne UVA.

Unter Beachtung dieser Randbedingungen sind UV-Absorber auszuwählen und nach verschiedenen Testkriterien dann der geeignetste Absorber zu bestimmen.

Das Experiment:

Material: Die hier beschriebenen Untersuchungen behandeln Stoffe aus PMMA mit dem grün fluoreszierenden Farbstoff Y7 und verschiedenen UV-Absorbern (Hersteller: Kuraray, Japan; ehemals Kyowa). Materialien dieser Art werden zum wellenlängenverschobenen Szintillationslichttransport z.B. im ZEUS-Kalorimeter eingesetzt (vergl. Kapitel 5).

Abbildung 4.5 zeigt die Transmissionsspektren der in den Wellenlängenschiebern gelösten UVA. Diese sind aus Vergleichen der UVA-haltigen WLS mit sonst identischem WLS ohne UV-Absorber berechnet worden. Angaben über die chemische Zusammensetzung und die Konzentration der UVA im Material liegen nicht vor. Alle Transmissionen wurden auf 2 mm dicke Basismaterialstücke bezogen.

Die verwendeten Probenstücke haben quaderförmige Geometrie und sind auf eine Größe von $250 \times 40 \times 2 \text{ mm}^3$ zugeschnitten. Es liegen fünf verschiedene Materialtypen vor:

• WLS ohne UV-Absorber,



Abbildung 4.6: Transmissionspektren aller fünf Probentypen (30 ppm Y7 in PMMA) und von GS 218, einem PMMA-Material ohne UVA und Farbstoffe. Die Zahlen bezeichnen die Abschneidewellenlängen der im Material gelösten UV Absorber. Alle Transmissionswerte beziehen sich auf 2,00 mm dicke Probenstücke.

- WLS mit UVA der Abschneidewellenlänge 332 nm (UVA 332 nm),
- WLS mit UVA der Abschneidewellenlänge 360 nm (UVA 360 nm),
- WLS mit UVA der Abschneidewellenlänge 380 nm (UVA 380 nm),
- WLS mit UVA der Abschneidewellenlänge 396 nm (UVA 396 nm),

Abbildung 4.6 zeigt die Transmissionsspektren der fünf im Experiment benutzten Materialtypen. Zum Vergleich ist zusätzlich das Transmissionspektrum von GS 218, einem PMMA-Material (der Firma Röhm, Darmstadt) ohne UVA und ohne Farbstoffzusatz, hinzugefügt. Alle Messungen beziehen sich auf 2,00 mm dicke Proben. Der Anteil des wellenlängenschiebenden Fluoreszenzfarbstoffs Y7 in den fünf WLS-Proben beträgt jeweils 30 ppm. Das Transmissonsverhalten dieses Farbstoffs läßt sich durch den Vergleich der WLS-Probe ohne UVA mit dem zusatzfreien GS 218 abschätzen: Abbildung 4.7 zeigt die Transmission der 30 ppm Farbstofflösung in einer 2,00 mm dicken Probe.

Strahlungsquelle: 40 Co-Quelle des HMI, Berlin.

Absorbierte Gesamtdosen: Zwischen 5,8 und 8,1 kGy, s. Tabelle 4.8.

Dosisleistungen: $(3,4\pm0,3)$ Gy/h bzw. $(1,9\pm0,1)$ kGy/h.

61


Abbildung 4.7: Transmissionspektrum des Fluoreszenzfarbstoffs Y7, wie er in 30 ppm Lösung in 2,00 mm dickem WLS Material vorliegt.

Umgebungsatmosphäre: 24 h vor und während der Bestrahlung je 800 hPa Argon bzw. Sauerstoff, dann Luftumgebung.

Temperatur: Zimmertemperatur.

Auswertung: Transmissionsmessungen mit Spektralphotometer.

Die Ergebnisse: Ziel dieser Untersuchungsreihe ist eine Aussage über die Verwendbarkeit von Wellenlängenschiebern verschiedener UV-Absorber in einem Detektor. Weil es dabei nicht um die Eigenschaften des Basismaterials oder des allen gemeinsamen Fluoreszenzfarbstoffs Y7 (genauere Informationen in [Bus93a] und [Bic92, Hol93]) geht, sollen konkret die Einflüsse der jeweiligen UV-Absorber herausgestellt werden.

Zu diesem Zweck sind neben den Wellenlängenschiebern mit verschiedenen UVA auch solche ohne UVA-Zusatz mitbestrahlt worden. Der gemessene Absorptionskoeffizient eines Wellenlängenschiebers mit UV-Absorber $\mu_{gem,uvs}$ setzt sich zusammen aus der Summe der Absorptionskoeffizienten der Einzelkomponenten (die Indices bezeichnen diese):

$$\mu_{\text{gem},\text{uvs}}(\lambda) = \mu_{\text{uvs}}(\lambda) + \mu_{\text{PMMA}}(\lambda) + \mu_{\text{V7}}(\lambda). \tag{4.18}$$

Nach Bestrahlung dient die Differenz der gemessenen Absorptionskoeffizienten $\Delta \mu_{gem,uva}$ als Schadensmaß, wobei sich $\Delta \mu_{gem,uva}$ wieder als Summe der $\Delta \mu$ der Einzelkomponenten schreiben läßt. Dabei beinhaltet jede dieser Komponenten die Absorptionsänderung, die durch den jeweiligen Bestandteil verursacht wird. Dies umfaßt sowohl Verringerungen der Absorption (negatives Vorzeichen) als auch deren Erhöhung an bestimmten Wellenlängen:

$$\Delta \mu_{\text{gem,uva}}(\lambda) = \Delta \mu_{\text{uva}}(\lambda) + \Delta \mu_{\text{PMMA}}(\lambda) + \Delta \mu_{\text{Y7}}(\lambda). \tag{4.19}$$

Subtrahiert man nun in einem zweiten Schritt die Differenzen der Absorptionskoeffizienten zweier unterschiedlicher Proben — eine mit und eine ohne UV-Absorber — voneinander, so fallen alle gemeinsame Schadensanteile weg und es verbleibt:

$$\Delta \mu_{\text{gem},\text{uvs}}(\lambda) - \Delta \mu_{\text{gem},\text{kein uvs}}(\lambda) = \Delta \mu_{\text{uvs}}(\lambda). \tag{4.20}$$

Voraussetzung ist dabei natürlich, daß die verglichenen Materialien sich in keiner weiteren Eigenschaft als dem Vorhandensein bzw. Fehlen eines UV-Absorbers unterscheiden.

Tabelle 4.8: Bestrahlungsdosen der Wellenlängenschieberproben (30 ppm Y7 in PMMA) mit verschiedenen UV-Absorbern.

		Abschneidewellenlänge des UV-Absorbers																
	ohne					332	nm		360 nm		380 nm		396 nm					
Typ*)	hDA	nDA	hDO	nDO	hDA	nDA	hDO	nDO	hDA	nDA	hDO	nDO	nDA	nDO	hDA	nDA	hDO	nDO
D (kGy)	6,1	8,2	6,7	8,1	5,8	8,0	6,4	7,9	5,5	7,5	6,1	7,5	7,3	7,3	5,8	7,7	6,4	7,7

⁴⁾ Zu den Bezeichnungen (hDA, nDA, hDO, nDO): hohe (hD) bzw. niedrige (nD) Dosisleistungen (1900 bzw. 3,4 Gy/h). Gasatmosphäre während der Bestrahlung: Argon (A) bzw. Sauerstoff (O).

Abbildung 4.8a-d zeigt die so gewonnenen $\Delta \mu_{uva}(\lambda)$ für die vier verschiedenen Typen von UV-Absorbern. Die Resultate der Auswertung lassen sich in zwei Kategorien diskutieren. Es gibt sowohl allen UV-Absorbern gemeinsame Verhaltensweisen als auch individuell unterschiedliche:

Gemeinsamkeiten aller UVA-Schädigungen:

- Oberhalb der Abschneidewellenlängen zeigen alle Proben unterschiedlich hohe zusätzliche Absorptionen (positives $\Delta \mu$). Offenbar führen die Zerstörungen des jeweiligen UV-Absorbers hier — entweder direkt als optisch aktive "Bruchstücke" des Farbstoffmoleküls oder indirekt über Transferreaktionen an andere Stoffe — zur Verschlechterung der Transmission gegenüber solchen Proben, die keinen UV-Absorber enthalten.
- Unterhalb der Abschneidewellenlängen führen Zerstörungen der UVA-Moleküle zu erhöhter Transmission (negatives $\Delta \mu$). Die relative Zahl zerstörter Farbstoffe ist aufgrund zu großer Fehler nicht genau bestimmbar (zu geringe Effekte an sehr steilen Absorptionsflanken).

64

50



66



- In den meisten Fällen haben die Dosisleistung und die Umgebungsatmosphäre keinen meßbaren Einfluß auf die Endschäden. Lediglich die Niedrigdosisleistung bei Sauerstoffumgebung während der Bestrahlung hat beim 396 nm UVA zu deutlich niedrigeren Schadenswerten im Bereich der positiven $\Delta \mu$ oberhalb ca. 400 nm geführt. Ähnliches deutet sich auch beim 380 nm UVA an.
- Die langwellig abschneidenden UVA (396 nm und 380 nm) zeigen im Vergleich zu den beiden anderen UVA höhere Schadenswerte im Bereich der Y7-Absorption um 450 nm, die bis in den Emissionsbereich (oberhalb 500 nm) des Y7 hineinreichen
- Bei recht großer zusätzlicher Absorption zwischen 350 nm und 500 nm zeigt der 332 nm-UVA einen deutlichen Einbruch im Bereich der Y7-Absorption: Hier sind möglicherweise mehr Y7-Farbstoffe zerstört worden, als bei den anderen Proben.
- Der 360 nm-UVA zeigt die geringsten Schäden im Bereich der Y7-Absorption und -Emission. Die sich andeutenden leichten Vertiefungen im Bereich der Y7-Absorption können in dieser Größenordnung auf systematische Fehler, z.B. in der Dickenbestimmung der Proben, zurückgehen.

Da die hier gezeigten Ergebnisse nur den permanenten Endschadenszustand wiedergeben, sei angemerkt, daß alle UV-Absorber nach Bestrahlungsende einen höheren Schadenswert als den hier gezeigten aufweisen. Im Laufe der Zeit findet in Luftumgebung eine teilweise Ausheilung auf den Endschaden statt. Dieser ist als Kriterium für die Bewertung der Verwendbarkeit im ZEUS-Kalorimeter entscheidend, wie die Ausführungen im folgenden Abschnitt zeigen werden.

Bei zusammenfassender Betrachtung erweist sich der 360 nm UVA als geeignetster der zur Verfügung stehenden Absorber. Er unterdrückt kurzwelliges Licht bis unmittelbar vor den Bereich beginnender Y7-Absorption und führt etwas oberhalb der Abschneidewellenlänge zu nahezu unmeßbar kleinen Veränderungen gegenüber der UVA-freien Probe. Die im ZEUS-Kalorimeter eingesetzten Wellenlängenschieber enthalten daher diesen UVA. Alle anderen UVA zeigen hier deutlich sichtbare Verschlechterungen der Transmission, die teilweise noch die Y7-Emission betreffen.



Abbildung 4.8: Beiträge $\Delta \mu_{uvs}$ /Dosis der UV-Absorber zum permanenten Endschaden bestrahlter Wellenlängenschieber (30 ppm Y7 in PMMA). Zu den Bezeichnungen (hDA, nDA, hDO, nDO): hohe (hD) bzw. niedrige (nD) Dosisleistungen (1900 bzw. 3,4 Gy/h). Gasatmosphäre während der Bestrahlung: Argon (A) bzw. Sauerstoff (O).

4.2.3 Einfluß der Dosisleistung

Für die Verwendung von Szintillatoren und Wellenlängenschiebern in Detektoren der Teilchenphysik ist es von großer Bedeutung, die Dosisleistungsabhängigkeit des Strahlenschadens zu kennen. Wie in den Abschnitten zuvor gesehen, treten nach Ende der meisten Bestrahlungen Ausheileffekte auf, die den unmittelbar nach Bestrahlungsende meßbaren Schaden im Laufe der Zeit reduzieren. Eine wichtige Frage ist nun, inwieweit sich Ausheileffekte schon während der Bestrahlung auswirken können. Wünschenswert in einem Detektor der Teikchenphysik ist, daß während der Bestrahlung Ausheilen stattfindet, so daß während der Bestrahlungsphase die sich in diesem Falle über Jahre bis Jahrzehnte erstreckt — immer der Endschaden vorliegt. Da für das Ausheilen meist Sauerstoff verantwortlich ist, hängt die Möglichkeit des Sauerstoffs, während der Bestrahlung in die Probe einzudringen, oft ursächlich mit dieser Frage zusammen. Des weiteren ist es für die quantitative Bewertung von Meßreihen und deren Vergleiche untereinander wichtig, mögliche Dosisleistungseffekte zu kennen, da aus experimentellen Gründen oft verschiedene Dosisleistungen gewählt werden müssen.

Das Experiment: Um erstmals ein Ausheilen von Strahlungsschäden an Wellenlängenschiebern zu beobachten, wurden Proben gleichartiger Zusammensetzung in verschiedenen Atmosphären bestrahlt und anschließend in Luft gelagert. Dabei wurde die Dosisleistung variiert. Die genauen Daten sind:

Strahlungsquelle: ⁶⁰Co-Quelle des HMI, Berlin.

Absorbierte Gesamtdosen: 3-7,5kGy (Fehler: 5%).

Dosisleistung: etwa 3,4 Gy/h, 6,7 Gy/h, 1,9 kGy/h und 2,7 kGy/h, s. auch Tabelle 4.8.

Umgebungsatmosphären: Luft, Sauerstoff und Argon (800 hPa) während der Bestrahlung. Davor (24 h) und danach Luft.

Temperatur: Zimmertemperatur.

Auswertung: Fahrtischmessungen

Material: PMMA mit Farbstoff Y7 (30 ppm) und UV-Absorber, der unterhalb 360 nm absorbiert.

Probengeometrie: Platten von 250 x 40 x 2 mm³.

Die Abbildungen 4.9a und 4.9b geben die zeitliche Entwicklung des Schadens nach Bestrahlungsende wieder.

Die in Luftatmosphäre bestrahlten Proben (Abb. 4.9a) zeigen keinerlei Dosisleistungsabhängigkeiten. Sowohl für die Bestrahlung bei 2,7kGy/h als auch für die 400-fach geringere Dosisleistung (6,7Gy/h) sind die Schadensverläufe identisch. Deutlich ist ein "build-up"-Effekt (Schadensanstieg nach Bestrahlungsende) zu sehen.

Anders ist das Verhalten in Abbildung 4.9b. Zwar zeigen die beiden Hochdosisleistungsbestrahlungen (1,9kGy/h) sowohl in Argon- als auch in Sauerstoffatmosphäre einen nahezu identischen Schadensverlauf, der — bis auf den hier fehlenden "build-up"-Effekt³-- auch dem der



Abbildung 4.9: Schadensentwicklung der unter verschiedenen Dosisleistungen und Umgebungsatmosphären bestrahlten Wellenlängenschieber bei Lagerung in Luftatmosphäre vor (24 h) und nach Bestrahlung.

Luftbestrahlung in Abbildung 4.9a gleicht. Aber die beiden Niedrigdosisleistungen (3,4 Gy/h) weichen deutlich von diesem Verhalten ab.

So weist die in Argon bestrahlte Probe einen höheren Anfangsschaden als die beiden bei Hochdosisleistung bestrahlten Proben auf. Als Ursache hierfür könnte vermutet werden, daß während der etwa 100 Tage dauernden Bestrahlung in Argon der anfangs in der Probe gelöste Sauerstoff zum Teil ausdiffundiert und nicht mehr in so großer Zahl einer Ausheilung zur Verfügung steht, wie dies bei den Hochdosisleistungsbestrahlungen der Fall ist. Dagegen zeigen aber z.B. Messungen von [Bos72], daß nach etwa 500 Gy Bestrahlungsdosis der in PMMA gelöste Sauerstoff aufgebraucht ist und nicht mehr zur Ausheilung zur Verfügung steht. Unter dieser Voraussetzung kann der in der betrachteten Probe gelöste Sauerstoff nur geringen Einfluß auf die Schadenshöhe haben und den in dieser Größe beobachteten Effekt nicht erklären. Eine andere mögliche Erklärung für den hohen Anfangsschaden der in Argon bestrahlten Probe kann ein während der Langzeitbestrahlung stattfindender "build up"-Effekt sein. So wurde bei Bestrahlungen von PMMA-Proben in inerter Atmosphäre (Stickstoff, Argon) ein höherer Anfangsschaden $\Delta \mu$ bei Langzeitbestrahlungen (ca. 24 kGy bei 30 Gy/h) als bei Bestrahlungen mit hoher Dosisleistung (ca. 24 kGy bei 1 kGy/h) beobachtet [Wic96]. Dieses Verhalten wurde mit während der Langzeitbestrahlung stattfindendem "build up" erklärt, der bei der kurzzeitigen Hochdosisleistungsbestrahlung erst ca. 50 Tage später seinen Höhepunkt erreicht. Die Diffusionszeiten sind größenordnungsmäßig ein Jahr [Wic89, Wic91], die Diffusionskonstante für O₂ in PMMA laut [Mit83] ist $D = (0,3-4) \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2 \text{s}^{-1}$. Während der Bestrahlung können sich die Diffusionszeiten, wie es bei SCSN-38 beobachtet wird ([Wic91], Abschn. 4.3.3), wegen möglicher Wechselwirkungen mit Reaktionsprodukten der Bestrahlung verlängern.

Auf der anderen Seite fällt die Schädigung der bei niedriger Dosisleistung in Sauerstoff bestrahlten Probe deutlich geringer aus, als bei der Hochdosisleistungsbestrahlung. Das gleiche Argument wie bei der Argonatmosphäre würde auch hier greifen: Aufgrund der langen Bestrahlungszeit bei niedriger Dosisleistung ist es dem umgebenden Sauerstoff möglich, während der Bestrahlung in die Probe nachzudiffundieren und zu verstärkter Ausheilung beizutragen.

Mit diesen Messungen konnte zum ersten Mal gezeigt werden, daß bei kleinen Dosisleistungen eine teilweise Ausheilung von PMMA-Proben möglich ist. In Luftatmosphäre war ein solches Verhalten im Dosisleistungsbereich von 30 Gy/h bis 1000 Gy/h bisher nicht zu beobachten [Wic91]. Deshalb soll das für den Szintillator SCSN-38 entwickelte Diffusionsmodell [Srö89, Wic91] nun auf den Fall den Wellenlängenschiebers übertragen werden.

³Die Ursache für das Enstehen eines "build-up" Effekts ist nicht völlig geklärt. Möglicherweise ist der Monomergehalt im Basismaterial damit verknüpft. Es laufen Untersuchungen zu diesem Thema [Fag96].

70

Nach [Srö89, Wic91] gilt für die Diffusion (stationärer Zustand) von Sauerstoff während einer Bestrahlung:

$$z_0^2 = \frac{2 \cdot \theta \cdot C_1}{S} \cdot T, \qquad (4.21)$$

mit :

- zo: Dicke der ausgeblichenen Randzone, vgl. Abb. 4.13a,
- θ : Diffusionskonstante von O₂,
- $C_1(p)$: Sättigungskonzentration von O₂ bei Druck p_i
 - T : Bestrahlungsdauer,
 - S: Menge des während der Bestrahlung gebundenen O2.

Es wird davon ausgegangen, daß der Sauerstoff an durch Bestrahlung erzeugte Radikale gebunden ist, weshalb S der Radikalkonzentration entspricht. Es wird ferner angenommen, daß mit dem Faktor g zur Erzeugung von Radikalen und der absorbierten Dosis D

$$S = g \cdot D$$
 unabhängig von der Dosisleistung D gilt. (4.22)

Nach dem Gesetz von Henry ist die Sättigungskonzentration C_1 proportional dem Partialdruck p, also

$$\theta \cdot C_1 = P \cdot p, \quad P$$
: Permeabilität von O₂. (4.23)

Es folgt schließlich

$$z_0^2 = \frac{2 \cdot P}{g} \cdot \frac{p}{D} = \text{const.} \cdot \frac{p}{D}.$$
 (4.24)

Zur Abschätzung der Eindringtiefe z_0 von Sauerstoff in die Probenoberfläche sei angenommen, daß eine scharfe Front die ausgeheilten Probenrandzonen (Abb. 4.13a) vom Probeninneren trennt. Im Probeninneren gilt nach dem Diffusionsmodell $\Delta \mu = \Delta \mu (Ar) = 6.57 \, \mathrm{cm^{-1}}$ Nimmt man zusätzlich an, der permanente Endschaden der ausgeheilten Bereiche sei $\Delta \mu_{perm} \approx 0$, so kann z_0 mit dem Quotienten der Schäden $\Delta \mu$ aus den 1,98 mm dicken sauerstoff- und argonbestrahlten Proben bestimmt werden:

$$\frac{\Delta\mu(800 \ hPa \ O_2)}{\Delta\mu(Ar)} = \frac{1.75}{6.57} = 0.27 = \frac{d-2z_0}{d}, \tag{4.25}$$

$$\Rightarrow z_0 = 0,72 \,\mathrm{mm}. \tag{4.26}$$

Diese berechnete Eindringtiefe von 0,72 mm stimmt sehr genau mit Messungen an reinem PM-MA überein, die mit einem Mikroskop vorgenommen wurden ([Bus92]: 0,65 mm bis 0,71 mm). Das PMMA war gleichzeitig mit den hier betrachteten Wellenlängenschiebern unter identischen Bedingungen bestrahlt worden. Mit der Kenntnis von z_0 kann const. aus Gleichung 4.24 bestimmt werden:

const. =
$$\frac{z_0^2 \cdot \dot{D}}{p} = \frac{0.72^2 \cdot 3.4}{800} \frac{\text{mm}^2 \text{Gy}}{\text{hPah}}$$

= 2.20 \cdot 10^{-3} $\frac{\text{mm}^2 \text{Gy}}{\text{hPah}}$ (4.27)

In Luftumgebung (Partialdruck $p(O_2) \approx 200$ hPa) heilt also ein 2 mm dicker ($\Rightarrow z_0 = 1$ mm) Wellenlängenschieber während der Bestrahlung aus, falls:

$$\dot{D} < \dot{D}_{krit} = \frac{const. \cdot p}{z_0^2} = \frac{2,20 \cdot 10^{-3} \cdot 200}{1^2} \, \text{Gy/h}$$

= 0,44 Gy/h. (4.28)

Für das ZEUS-Kalorimeter in einem geschätzten Strahlungsfeld einer mittleren Dosisleistung von weniger als 0,04 Gy/h bedeutet dies, daß die Wellenlängenschieber sich während des Betriebes immer im Endschadenszustand befinden.

4.3. STRAHLUNGSSTABILITÄT VON SZINTILLATOREN

4.3 Strahlungsstabilität von Szintillatoren

Materialien auf der Basis von Polystyrol (PS) sind in Detektoren der Teilchenphysik sehr weit verbreitet. Polystyrol ist mechanisch unproblematisch, einfach zu fertigen, kostengünstig und recht strahlungsbeständig. Es szintilliert mit Emissionswellenlängen um 260 nm und wird deshalb zur Verwendung in der Teilchenphysik oft mit Farbstoffen dotiert, die das Szintillationslicht langwellig verschieben.

Im ZEUS-Kalorimeter wird SCSN-38 (Hersteller KURARAY, Japan; vormals KYOWA, Japan) eingesetzt, dessen PS-Basismaterial mit zwei Farbstoffen vermengt ist (1% b-PBD, "1 Fluor" und 0,02% BDB "2.Fluor"). Damit wird eine Verschiebung der mittleren Emissionswellenlänge in zwei Stufen nach ca. 440 nm errreicht, wo das Absorptionsspektrum des PMMA-Wellenlängenschiebers mit dem Farbstoff Y7 liegt (vgl. Abb. 2.2).

In den folgenden Abschnitten wurde ein ähnlicher Aufbau angestrebt, wie er oben im Abschnitt der Stoffe auf PMMA-Basis (s. Abschn. 4.2) verwendet wurde. Die Motivationen für die verschiedenen experimentellen Fragestellungen und Vorgehensweisen sind für beide Materialien oft ähnlich und werden hier nur erläutert, wenn dabei keine Wiederholung des im PMMA-Abschnitt bereits Gesagten vorliegt.

4.3.1 Dosisabhängigkeit und Strahlungsquellen

Dosisabhängigkeit bei 7-Bestrahlung

Messungen am Fahrtisch: Testbestrahlungen mit unterschiedlichen Dosen wurden unter folgenden Bedingungen vorgenommen:

Strahlungsquelle: 60 Co-Quelle des HMI, Berlin.

Absorbierte Gesamtdosen: 1,62, 1,01, 5,40, 6,63, 8,60 und 21,2 kGy (Fehler: 5%).

Dosisleistung: bei 21,2 kGy etwa 1,4 kGy/h, sonst etwa 2,2 kGy/h.

Umgebungsatmosphäre: vor, während und nach der Bestrahlung Luftatmosphäre.

Temperatur: Zimmertemperatur.

Auswertung: ortsabhängige Fluoreszenzanregung mit Meßtisch.

Material: SCSN-38.

Probengeometrie: Platten mit Abmessungen von 200 x 40 x 2,6 mm³.

Ergebnisse: Wegen der sehr kurzen Ausheilzeiten des Materials von einigen bis zu einigen zehn Stunden und der großen räumlichen Distanz des Bestrahlungsortes Berlin zum Meßort Hamburg konnten Messungen des Anfangsschadens auf diese Art nicht sinnvoll durchgeführt werden.

Messungen des zeitlich unveränderlichen Endschadens fanden 16 Tage nach Bestrahlungsende statt. Die Schadenswerte zeigen eine lineare Abhängigkeit des Endschadens (vgl. 4.1) von der applizierten Strahlungsdosis [Slo92, Bic91]:

$$b_{\text{Tiech},\gamma} = (0, 8 \pm 0, 2) \cdot 10^{-6} \text{Gy}^{-1} \text{cm}^{-1}$$
 (4.29)

Messungen mit Spektralphotometer: Dieselben Proben, die zuvor in der Fahrtischmessung erwähnt wurden, konnten auch mit dem Spektralphotometer etwa 40 Tage nach Bestrahlungsende untersucht werden. Tabelle 4.9 zeigt für einige Wellenlängen im beginnenden Absorptionsbereich (380, 390 nm) und einige im Emissionsbereich (420 — 480 nm) die Differenzen der monochromatischen Absorptionskoeffizienten der bestrahlten und unbestrahlten Zustände der Proben.

Tabelle 4.9: Monochromatische Schadenswerte $\Delta \mu(\lambda)$ aus Transmissionsmessungen an γ -bestrahltem (⁶⁰Co) SCSN-38 nach Ende des Ausheilungsprozesses für verschiedene Wellenlängen und Strahlungsdosen.

 $\Delta u(\lambda)(10^{-3} cm^{-1})$

	<u> </u>					100 111
1,6	-422 ± 590	-370 ± 107	9±3	12±3	9±3	3 ± 3
3,0	-519±577	-505 ± 106	2±3	10±3	5±3	1 ± 3
5,4	-981 ± 557	-793 ± 104	5±3	10 ± 3	6±3	2 ± 3
6,6	-1258 ± 525	-998 ± 102	5±3	9±3	4±3	1 ± 3
8,6	-1654 ± 500	-1276 ± 100	8±3	9±3	5±3	1±3
21,2	-2652 ± 477	-1934 ± 95	34 ± 3	31 ± 3	16±3	5 ± 3

Im Bereich der Absorption des 2. Fluors (BDB) zeigen sich negative Schadenswerte vermelden, die — bis auf die höchste Dosis — linear mit der Strahlungsdosis wachsen. Hier sind wahrscheinlich BDB-Farbstoffe zerstört worden. Ältere Untersuchungen [Wic91] bestätigen dies. Bemerkenswert ist das Verhalten bei 21,2 kGy: hier setzt sich die Linearität bei den vorangegangenen niedrigeren Dosen nicht fort. Ein Meßfehler oder Bestrahlung mit zu niedriger Gesamtdosis fallen als Ursache aus; dieses wird auch durch die später beschriebene Neutronenbestrahlung gestützt, die bei etwa denselben absoluten $\Delta \mu(\lambda)$ ganz ähnliche Nichtlinearitäten zeigt. Eine genauere Diskussion dieses Effektes findet im Zusammenhang mit der Neutronenbestrahlung statt.

Im Emissionsbereich des 2. Fluors liegen positive $\Delta \mu(\lambda)$ vor; es sind also zusätzliche Absorptionszentren durch die Bestrahlung gebildet worden. Leider sind die relativen Meßfehler so hoch, daß für fast alle Wellenlängen (Ausnahme: 420 nm) nur die höchste Dosis auswertbare Schäden zeigt.

Lineare Anpassungen an die Schadenswerte (für 380 und 390 nm ohne die höchste Dosis) liefern die in Tabelle 4.10 gezeigten Werte.

Eine andere Untersuchung [Bic91] erhält nach Gleichung 4.1 bei 430 nm

$$b_{\gamma}(\lambda = 430 \text{ nm}) = (2, 0 \pm 0, 2) \cdot 10^{-6} \text{ Gy}^{-1} \text{ cm}^{-1}.$$
 (4.30)

Der Anfangsschaden war

$$a_{\gamma}(\lambda = 430 \text{ nm}) = (36 \pm 3) \cdot 10^{-6} \text{ Gy}^{-1} \text{ cm}^{-1}$$
 (4.31)

72

Dosis

73

Tabelle 4.10: Endschadensparameter $b_{\gamma}(\lambda) = \Delta \mu_{end}/D$ für SCSN-38 aus Transmissionsmessungen für verschiedene Wellenlängen.

	Endschadensparameter(λ)(10 ⁻⁶ Gy ⁻¹ cm ⁻¹)							
380 am	390 nm	420 nm	430 nm	450 nm	480 nm			
 -190 ± 41	-151±8	1,45±0,11	1,45±0,11	0,79±0,11	0,24±0,11			

Dosis- bzw. Flußabhängigkeit bei γ - und Mischfeldbestrahlung

Das Szintillatormaterial wurde zugleich mit Wellenlängenschieberproben aus einem vorangegangenen Abschnitt (s. S. 50) bestrahlt, weshalb die experimentellen Daten dort nachzulesen sind.

Zum Vergleich der Schädigungen der Reaktor-Mischfeldbestrahlung mit der ⁶⁰Co γ-Bestrahlung zeigt Abbildung 4.10 die spektralen Endschäden. Im (in der Grafik mit vergrößertem Maßstab dargestellten) Bereich oberhalb 410 nm sind qualitativ keine Unterschiede in den Kurvenformen erkennbar. Beim Vergleich mit den Wellenlängen unterhalb 410 nm Mischfeldbestrahlung kleinere sich bei allen anderen der



fällt gleichwohl auf, daß die Mischfeldbestrahlung kleinere Schäden hervorruft, als die γ -Bestrahlung. Dieses überraschende Verhalten wiederholt Abbildung 4.10: Vergleich der spektralen Endschäden für γ und neutronenmischfeldbestrahlte SCSN-38 Szintillatoren. γ -Strahlungsdosis (durchgezogene Kurven): 21,2 kGy; Neutronenbestrahlungsdauer: 84 s im Reaktormischfeld (Flüsse und Dosen s. Text, gepunktete Kurven).

vorliegenden Dosen bzw. Äquivalentdosen, wie die Aufstellung der $\Delta \mu(\lambda)$ in der folgenden Tabelle 4.11 zeigt.

Im Rahmen der Meßgenauigkeit läßt sich für alle Wellenlängen oberhalb 420 nm ein linearer Zusammenhang des zusätzlichen Absorptionskoeffizienten $\Delta \mu(\lambda)$ mit der Bestrahlungsdauer feststellen. Dies trifft auch für die ersten drei Bestrahlungsdauern der negativen $\Delta \mu(\lambda)$ der beiden kurzwelligen Wellenlängen zu. Allerdings setzt der Schaden aus der höchsten Bestrahlungsdauer die anderen nicht linear fort, sondern erscheint zu niedrig. Damit wiederholt sich das im Abschnitt oben zur γ -Bestrahlung festgestellte Phänomen auch bei der Neutronen-Mischfeld-Bestrahlung.

Die Abbildungen 4.11 (a) und (b) stellen zum Vergleich der Effekte beide Bestrahlungsarten einander gegenüber. Deutlich wird die "Unterproportionalität" der jeweils höchsten Dosis sichtbar. Bemerkenswert ist, daß die Linearität zwischen Bestrahlungsdosis bzw. -dauer Tabelle 4.11: Monochromatische Schadenswerte $\Delta \mu(\lambda)$ aus Transmissionsmessungen an Neutronen-Mischfeld-bestrahltem SCSN-38 nach Ende des Ausheilungsprozesses für verschiedene Wellenlängen und Strahlungsdosen.

Dauer	$\Delta\mu(\lambda)(10^{-3} \mathrm{cm}^{-1})$									
(s)	380 nm	390 nm	420 nm	430 nm	450 nm	480 nm				
8 42 84 420	-294 ± 1744 -896 ± 966 -1943 ± 1234 -2743 ± 866	-181 ± 134 -736 ± 74 -1470 ± 100 -2018 ± 72	9±8 23±5 55±8 241±7	3 ± 7 15 \pm 5 39 \pm 8 179 \pm 6	2 ± 7 7 ± 5 24 ± 7 101 ± 6	2 ± 7 1 ± 5 5 ± 7 39 ± 6				

und Schadenswert bei beiden Bestrahlungsarten bis zu einem $\Delta \mu$ von etwa 1,5 cm⁻¹ anhält, bevor das "Abknicken" einsetzt. Dies ist besonders deshalb interessant, weil — wie sich im Anschluß bei der Berechnung der Äquivalentdosisleistung für die Mischfeldbestrahlung zeigt — der Geradenanstieg bei der γ -Bestrahlung etwa um einen Faktor 3 höher ist als bei der Mischfeldbestrahlung. Mit anderen Worten heißt das, die "Sättigung" des $\Delta \mu (\lambda < 410 nm)$ setzt bei beiden Bestrahlungsarten am selben $\Delta \mu$ (bei 390 nm z.B. $\approx 1,5 \text{ cm}^{-1}$) ein, obwohl die Proben der Reaktor-Mischfeldbestrahlung hier eine etwa dreifach so hohe Äquivalentdosis erlitten haben. Bei Wellenlängen oberhalb 410 nm stimmen die auf die Dosis bezogenen relativen Schadenshöhen dagegen gut überein, wie Tabelle 4.13 zu entnehmen ist.

Zur genaueren Betrachtung der Farbstoffzerstörung zeigt Abbildung 4.12 die relative Mindestanzahl zerstörter BDB-Farbstoffe $-\Delta \mu/\mu_{unbestr.}$ gegen die Dosis aufgetragen⁴. Dabei wurde $-\Delta \mu/\mu_{unbestr.}$ im Wellenlängenbereich 386 – 400 nm aufgrund guter Konstanz – was auf ein dominierendes $\Delta \mu$ dieses Farbstoffs BDB gegenüber anderen evtl. zusätzlichen Absorptionszentren hindeutet – gemittelt. Messungen an bestrahltem reinem Polystyrol⁵ deuten außerdem an, daß zusätzliche Absorptionszentren des Reinmaterials um 390 nm bei gleicher Dosis ein positives $\Delta \mu$ von betragsmäßig nur etwa 3% des negativen $\Delta \mu$ der Farbstoffzerstörung in SCSN-38 erreichen. Nimmt man einen exponentiellen Zusammenhang zwischen absorbierter Dosis D und der Zahl verbliebener intakter Farbstoffe N_{fluer} der Art

$$N_{\text{fluor}}(D) = N_{\text{fluor}}(D=0) \cdot e^{-\frac{D}{d_e}}$$
(4.32)

an, so gilt (bei Gültigkeit des Beerschen Gesetzes $\mu(\lambda) = \kappa(\lambda) \cdot N$, was hier zutrifft)

$$-\frac{\Delta\mu_{\text{fluor}}}{\mu_{\text{fluor}}} = 1 - \frac{N_{\text{fluor}}(D)}{N_{\text{fluor}}(D=0)} = 1 - e^{-\frac{D}{d_e}}.$$
(4.33)

⁴Würde kein anderes Absorptionszentrum diesen Wellenlängenbereich überlagern, so wäre das $-\Delta \mu/\mu_{unbestr.}$ in diesem Wellenlängenbereich konstant und der Zahlenwert gleichbedeutend mit der Anzahl zerstörter Farbstoffe. Kann die Anwesenheit anderer Absorptionszentren (mit positivem $\Delta \mu$) nicht ausgeschlossen werden, so ist $-\Delta \mu/\mu_{unbestr.}$ kleiner als die wahre Zahl zertörter Farbstoffmoleküle

⁵Im Hause gefertigt von Herrn Dipl. Phys. S. Faghihi; gemessen von Herrn R. Ladwig.



Abbildung 4.11: Dosisabhängigkeit des durch Strahlung induzierten zusätzlichen Absorptionskoeffizienten bei 390 nm (beginnender Absorptionsbereich des 2. Farbstoffs BDB) für beide Bestrahlungsarten. Die Geraden markieren lineare Anpassungen an die ersten Meßpunkte.

Eine Anpassung dieses Exponentialzusammenhangs an die Meßdaten liefert einen in diesem Ausschnitt nahezu linearen Verlauf (obere der durchgezogenen Kurven in Abb. 4.12). Der Meßpunkt höchster Bestrahlungsdosis paßt in dieses Bild nicht hinein. Um eine vergleichbare Exponentialkurve durch den letzten Meßpunkt zu "zwingen", muß ein Faktor f vor den Ausdruck in Gleichung 4.33 multipliziert werden:

$$-\left(\frac{\Delta\mu_{\text{fluor}}}{\mu_{\text{fluor}}}\right)_{\text{korr}} = f \cdot \left(1 - e^{-\frac{D}{d_e}}\right). \tag{4.34}$$

Den daraus resultierenden Verlauf zeigt die untere der beiden Kurven. Diese Konstruktion soll zeigen, daß offenbar schon weit vor dem eigentlichen durch verminderte Farbstoffanzahl.bedingten "Abknicken" der Kurve aus nahezu linearem Verlauf eine Art Sättigung eintritt. Der Faktor f würde in diesem Bild den Bruchteil der überhaupt nur "zerstörbaren" Farbstoffmoleküle bezeichnen. In der durchgeführten Anpassung läge er bei 20%. Sehr ähnliche Gegebenheiten finden sich bei der Neutronenbestrahlung, wie auch in [Buß95] nachzulesen ist.



Abbildung 4.12: Relative Farbstoffzerstörung γ bestrahlter SCSN-38 Proben gegen die absorbierte Dosis.

Eine mögliche Erklärung hierfür wären Oberflächeneffekte. Würden z.B. in einer Oberflächenschicht bestimmter Dicke aufgrund bestimmter Wechselwirkungen mit der Umgebung nahezu alle Farbstoffe zerstört, während in tieferen Materialschichten die Farbstoffzerstörung vergleichsweise langsamer voranschreitet (oder auch umgekehrt), so würde das beobachtete Verhalten eintreten. Gegen diese Erklärung sprechen aber die experimentellen Befunde aus dem Vergleich der γ -Bestrahlung mit der Reaktor-Mischfeld-Bestrahlung. Wären nämlich Oberflächeneffekte die Ursache, so müßten irgendwelche Diffusionsvorgänge während der Bestrahlung mit der Umgebungsatmosphäre verantwortlich sein, die bestimmte Reaktionsgeschwindigkeiten hätten. Nun setzen aber die "Sättigungen" beider Bestrahlungsarten bei derselben relativen Farbstoffzerstörung $-\Delta \mu/\mu_{unbestr}$ ein, was in diesem Erklärungsversuch gleichbedeutend mit übereinstimmenden Schichttiefen nahezu vollständig zerstörter Farbstoffe wäre. Bei gleicher Dosisleistung wäre dies auch zu erwarten, aber die Reaktorbestrahlung hat mit einer Dosisleistung von nahezu 1 MGy/h gegenüber etwa 2 kGy/h der γ -Bestrahlung deutlich höhere Werte. Weiteren Hinweis zu einer Oberflächeneffekt-These geben Messungen zu Dosisleistungseffekten [Srö89, Wic91].

Eine weitere Möglichkeit der Erklärung böte die Vorstellung, daß andere durch Bestrahlung entstandene Produkte — z.B. Radikale — mit den Farbstoffen in Wechselwirkung träten und diese zerstörten. Es könnten dann verschiedene Typen von z.B. Radikalen, die mit unterschiedlicher Dosisabhängigkeit gebildet werden, die Farbstoffe zerstören. Für Polystyrol sind mindestens drei Radikalklassen beobachtet worden [Har69], deren Entstehungsraten bei unterschiedlichen Dosen nichtlinear werden. Allerdings treten die dort gesehenen Sättigungseffekte frühestens ab 120 kGy in Erscheinung, so daß eine Übertragung auf die hier gesehenen Effekte fraglich erscheint.

Tabelle 4.12: Endschadensparameter $b_n(\lambda) = \Delta \mu_{end}/Bestrahldauer$ aus Transmissionsmessungen für verschiedene Wellenlängen.

			Endschadensparameter(λ)(10 ⁻³ s ⁻¹ cm ⁻¹)							
		380 nm	390 nm	420 nm	430 nm	450 nm	480 nm			
bn())	-23 ± 12	-18 ± 1	$0,576\pm0,015$	0,427 ± 0,015	0,241 ± 0,014	0,092±0,014			

Die Geradenanpassungen an die Dosisabhängigkeit der $\Delta \mu(\lambda)$ erfolgt aufgrund der beschriebenen Nichtlinearität bei den beiden niedrigsten Wellenlängen nur an die drei ersten Bestrahlungsdauern. Für die anderen Wellenlängen sind dagegen alle Punkte verwendet worden. Die Ergebnisse stellt Tabelle 4.12 zusammen.

Tabelle 4.13: Berechnete scheinbare γ -Äquivalentdosisleistung des Reaktor-Mischfeldes aus den Quotienten der Endschadensparameter $b_n(\lambda)$ und $b_{\gamma}(\lambda)$ (Tabellen 4.12 und 4.10).

	so	scheinbare Äquivalentdosisleistung(λ) (Gy s ⁻¹)								
	380 nm	390 nm	420 nm	430 nm	450 nm	480 nm				
bn/by	120 ± 70	116 ± 9	379 ± 32	295 ± 25	305 ± 46	383±185				

76

Zur Berechnung der "scheinbaren" oder "effektiven" Äquivalentdosisleistung⁵ des Reaktor-Mischfeldes werden die Endschadensparameter der Reaktorbestrahlung $b_n(\lambda)$ durch die der γ -Bestrahlung $b_{\gamma}(\lambda)$ dividiert. Das Ergebnis sind Dosisleitungen eines γ -Bestrahlungsfeldes in Tabelle 4.13, das zu denselben Schäden führt, wie sie bei der Mischfeldbestrahlung aufgetreten sind.

Die Werte zeigen eine deutliche Zweiteilung: Für 380 und 390 nm ergibt sich eine mittlere effektive Äquivalentdosisleitung von

$$\frac{b_n}{b_n} (\lambda < 410 \text{ nm}) = (118 \pm 35) \text{ Gy s}^{-1}, \qquad (4.35)$$

während sich für 420, 430, 450 und 480 nm eine mittlere effektive Äquivalentdosisleistung von

$$\frac{b_n}{b_{\gamma}} (\lambda > 410 \text{ nm}) = (329 \pm 18) \text{ Gy s}^{-1}$$
(4.36)

ergibt. Nach Gleichung 4.13 beträgt die γ -Dosisleistung am Bestrahlungsort für PMMA etwa 194 Gy s⁻¹, was aufgrund der ähnlichen Elementanteile zu Polystyrol hier übernommen werden kann.

Bemerkung 2 (Zur Abschätzung der γ -Äquivalentdosisleistung in PS)

Wie schon in Bemerkung 1 (S. 53ff.) am Beispiel von Alanin durchgeführt, soll auch hier die zu erwartenden Äquivalentdosisleistung mit Hilfe von KERMA-Faktoren abgeschätzt werden. Grundlage ist Gleichung 4.6. Tabelle 4.14 stellt die wichtigsten Daten zur Berechnung für Polystyrol zusammen.

Tabelle 4.14: Zusammensetzung von Polystyrol $(C_{\delta}H_{\delta})_{n}$.

Element E	Molmasse Element m _{mal,E} (g/mol)	Anzahl Elemente in Monomer-Einheit von PS n _E	Molmasse in PS MonEinh. m _{mol,E,PS} (g/mol)	$ \left(\frac{N_i}{m}\right)_E $ $(10^{22} g^{-1})$	
C	12,01	8	96,08	4.626	
H	1,008	8	8,06	4,626	
	Molmasse PS Ma	onomer-Einheit m _{mol,PS} :	104,14		

1. Thermische Neutronen Von Bedeutung für die Dosimetrie ist allein der

Neutroneneinfang ${}^{1}H(n,\gamma)^{2}H$:

$$\sigma_{H} = 3, 32 \cdot 10^{-25} \text{ cm}^{2}$$

$$\left(\frac{N_{t}}{m}\right)_{H} = 4, 626 \cdot 10^{22} \text{ g}^{-1}$$

$$E_{tr,H} = 2, 2 \text{ MeV} \cdot \left(1 - e^{-\mu_{en} \cdot x}\right)$$

$$mit$$

$$\mu_{en} = \frac{\mu_{en}}{\rho} \cdot \rho.$$

$$\frac{\mu_{en}}{\rho} : \text{Massenabsorptionskoeffizient} \approx 0,025 \text{ cm}^{2} \text{ g}^{-1}$$

$$\rho : \text{Dichte} = 1,06 \text{ g cm}^{-3},$$

$$x : \text{Materialdicke} < 1,0 \text{ cm}.$$

Somit folgt: $F_{n,H}^{\text{therm}} = 1,41 \cdot 10^{-13} \text{ Gy cm}^2$ (4.37)

2. Schnelle Neutronen Die Rechnung vollzieht sich analog zu Bemerkung 1 und ergibt schließlich:

$$F_n^{schnell} = -1,88 \cdot 10^{-11} \ Gy \ cm^2. \tag{4.38}$$

Mit den Neutronenflüssen nach Gleichung 4.3 und den KERMA-Faktoren aus den Gleichungen 4.37 und 4.38 ergibt sich die γ -Äquivalentdosisleistung aller wesentlichen Beiträge von Neutronen in Polystyrol als

$$\dot{D}_{\rm PS,n-\gamma-\bar{s}quiv.} = F_n^{\rm therm} \cdot \dot{\Phi}_{\rm therm} + F_n^{\rm schnell} \cdot \dot{\Phi}_{\rm schnell} = 59 \,\rm Gy \, s^{-1}.$$
(4.39)

Damit ist die Gesamtdosisleistung der Reaktor-Mischfeld-Bestrahlung in Polystyrol

$$\dot{D}_{\rm PS,misch} = 253 \,\rm Gy \, s^{-1}$$
 (4.40)

Dieser auf Alanin-Dosimetrie und KERMA-Abschätzungen beruhende Wert ist niedriger als der durch Vergleich mit γ -geschädigtem Polystyrol gewonnene von 329 Gy s⁻¹. Bedauerlicherweise können systematische Fehler in der Dosimetrie (Bestrahlungsdauer) und durch Umgebungseinflüsse hervorgerufene (möglicherweise erhöhte Temperatur während der Bestrahlung, sehr hohe Dosisleistung im Vergleich zu γ -Bezugsbestrahlungen) nicht ausgeschlossen werden. Deshalb kann angesichts dieser Einflüsse nur vorsichtig gefolgert werden, daß die relative Empfindlichkeit des SCSN-38 auf schnelle Neutronenanteile des Reaktor-Mischfeldes anscheinend nicht niedriger ist, als bei γ -Bestrahlung. Eine Halbierung der relativen Empfindlichkeit des Stoffes auf schnelle Neutronen, wie sie z.B. bei [Kat86] für Alanin aufgrund eines höheren linearen Energietransfers (LET) beobachtet wird, kann also wahrscheinlich nicht auf Polystyrol

77

⁶Mit "scheinbarer Äquivalentdosis" von Neutronen ist in dieser Arbeit die Strahlungsdosis gemeint, die im betrachteten Material den gleichen Effekt ($\Delta \mu$) hervorruft, wie eine entsprechende ⁶⁰Co γ -Strahlungsdosis.

übertragen werden. Eher liegt eine erhöhte Empfindlichkeit des Polystyrols auf schnelle Neutronen vor, die auch von [Hag83] beschrieben wird (vgl. Abschnitt 2.3.1).

Genaueren Aufschluß über diesen Sachverhalt können aber nur weitere Untersuchungen mit möglichst hohem Anteil schneller Neutronen am Gesamtstrahlungsfeld geben. Dabei sollten auch die Umgebungsbedingungen (Temperatur, Dosisleistung) so gehalten werden, daß sie möglichst gut mit γ -Bestrahlungen übereinstimmen, auf die Bezug genommen wird.

Der eben gezogene Vergleich bezieht sich auf Wellenlängen oberhalb 410 nm. Während dort zwischen γ - und Reaktor-Mischfeld-Bestrahlung also recht ähnliche Verhältnisse herrschen, ist für den Absorptionsbereich des SCSN-38 unterhalb 410 nm ein deutlicher Unterschied in der Strahlungsempfindlichkeit auszumachen. Gegenüber der γ -Bestrahlung scheint die Zerstörungsrate der Mischfeldbestrahlung (im linearen Schaden-Dosis-Bereich, s.o.) um einen Faktor 2-3 reduziert. Die Ursache dafür in LET-Effekten zu sehen, wäre sicherlich unzutreffend, da der Neutronenanteil am Gesamtstrahlungsfeld (s. Gleichungen 4.39 und 4.40) zu gering ist. Ursache dieses Verhaltens könnten Dosisleistungseinflüsse sein: Bei der Reaktor-Mischfeld-Bestrahlung erfolgte die Bestrahlung mit derselben Äquivalentdosis, wie sie bei den γ -Bestrahlungsversuch folgt im anschließenden Abschnitt. Ursache des Verhaltens könnten auch die während der Bestrahlung im Reaktorbecken möglicherweise erhöhten Temperaturen sein. Vergleichsinformationen zur Schadensentwicklung in SCSN-38 bei erhöhter Bestrahlungstemperatur liegen allerdings nicht vor.

4.3.2 Farbstoffzerstörung

Die Untersuchungsmethoden zur strahlungsbedingten Farbstoffzerstörung entsprechen denen für Wellenlängenschiebermaterialien. Es sei in diesem Zusammenhang deshalb auf die Beschreibungen auf S. 58 und in Anhang A.1 verwiesen. Die effektive Fluoreszenzlichtverminderung durch Bestrahlung des Szintillators SCSN-38 pro absorbierter Strahlungsdosis ist [Bic91, Buß95]:

$$\left(\frac{I_{\rm fl,b}}{I_{\rm fl,0}}\right)_{SCI}(D) = 1 - (9 \pm 1) \cdot 10^{-6} \,\,\mathrm{Gy}^{-1} \cdot D. \tag{4.41}$$

V. Stieber [Sti89] hat im Rahmen seiner Diplomarbeit SCSN-38 Proben unterschiedlicher Dicke mit γ -Strahlung einer Dosis von etwa 24 kGy binnen eines Tages ($\dot{D} \approx 1 \text{ kGy/h}$) in Luftbzw. Argonatmosphäre bestrahlt und anschließend in Luft gelagert. Zur Bestimmung der relativen Mindestanzahl zerstörter BDB-Farbstoffe (s. S. 74) wurden die Verhältnisse $-\Delta \mu/\mu_{\text{unbestr.}}$ nach Erreichen des Endschadens im Wellenlängenbereich 375 — 400 nm gemittelt. Beim Vergleich der Werte in Tabelle 4.15 fällt auf, daß der Anteil zerstörter Farbstoffe bei Bestrahlung in Luft mit wachsender Probendicke abnimmt. Bei solchem Verhalten liegt die Vermutung nahe, daß die Farbstoffe in einer Oberflächenregion in anderer Zahl zerstört werden, als dies im Innern der Probe der Fall ist. Offenbar ist Sauerstoff in den Probenrandzonen für die erhöhte Zerstörungsrate verantwortlich, da in Argonatmosphäre eine deutlich verminderte, dickenunabhängige Schädigung auftritt.

	$-\Delta\mu/\mu_{unbestr.}$ (%)	bei Bestrahlung in
Dicke (mm)	Argon	Luft
0,7		43±6
3,0	8±3	30 ± 3
5,0	7±4	17±4

4.3.3 Einfluß der Dosisleistung

Für diesen Abschnitt gilt die gleiche Motivation, die bereits im entsprechenden Abschnitt über Wellenlängenschieber erläutert wurde: Ein Szintillator im Detektor sollte so beschaffen sein, daß er während der Bestrahlungsphasen — die, mit Unterbrechungen, Jahre bis Jahrzehnte dauern — so ausheilen kann, daß er sich stets im Endschadenszustand befindet.

Ein mit typisch einigen kGy Strahlungsdosis bestrahlter SCSN-38 Szintillator einiger Millimeter Dicke heilt nach Abschluß der Bestrahlung binnen einiger bis einiger zehn Stunden in Luftatmosphäre vom höheren Anfangsschaden auf den zeitlich unveränderlichen Endschaden aus. Dies haben zahlreiche Messungen, z.B. [Hol89a, Bic91, Buß94, Sac95, Wic89, Wic91], untermauert von theoretischen Modellen zur Diffusion des für die Ausheilung verantwortlich gemachten Sauerstoffs [Sac95, Wic89, Wic91] gezeigt.

Ausheilen während der Bestrahlung

Um herauszufinden, welche Dosisleistungen ein Ausheilen des Szintillators SCSN-38 während der Bestrahlung erlauben (Messungen und Daten aus [Srö89, Wic91]), wurden Proben bei Dosisleistungen von D = (31, 94, 1000) Gy/h und einer gemeinsamen Gesamtdosis von 24 kGy mit γ -Quanten in Luft bestrahlt. Das bedeutet Bestrahlungsdauern von 31,5, 10,5 und 1 Tagen.

Unmittelbar nach Bestrahlungsende wurden die Proben mit einem Mikroskop auf die Eindringtiefe des bis dahin eindiffundierten Sauerstoffs vermessen. Das Ergebnis zeigt Abbildung 4.13b. Grundlage des Verfahrens sind Untersuchungen, die einen Zusammenhang zwischen dem Rückgang der Braunfärbung bestrahlter Proben von den Probenoberflächen her und dem Eindringen von Sauerstoff in die Probenoberfläche aufzeigen [Hol89a, Sac95, Sti89, Wic91]. Dabei hat sich herausgestellt (s. auch [Clo88]), daß der Übergang von ausgeheilter Randzone (nahezu ohne Radikale mit Sauerstoff) und Probeninnerem (praktisch ohne Sauerstoff und in Anfangsschadenszustand) ein sehr scharfer ist, der sich gut mit einem Mikroskop ausmessen läßt (Abbildung 4.13a). Hat der Sauerstoff die halbe Dicke d/2 einer Probe von beiden Seitenflächen her durchquert, so ist die Probe ausgeheilt. Ähnlich dem Ausheilprozeß nach Bestrahlungsende [Wic89, Wic91] läßt sich auch für die Ausheilung während der Bestrahlung eine lineare Beziehung zwischen dem Quadrat der Tiefe der ausgeblichenen Zone z_0^2 und der

81





(b) Quadrat der Dicke der ausgeblichenen Zone z_0^2 in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit (untere Abszisse) bzw. der Dosisleistung (obere Abszisse) unmittelbar nach Bestrahlungsende (D = 24 kGy).

Abbildung 4.13: Modell und Messung zum Ausheilen während der Bestrahlung in SCSN-38 [Wic91].

Bestrahlungsdauer T finden

$$z_0^2 = \beta \cdot T. \tag{4.42}$$

Allerdings ist die Proportionalitätskonstante um den Faktor 5,6 kleiner als beim Ausheilen nach Bestrahlungsende; eine SCSN-38 Probe braucht also während der Bestrahlung 5,6 mal länger zum Ausheilen als nach Bestrahlungsende. Erklärt werden kann dieses unterschiedliche Verhalten mit der Vorstellung, daß Sauerstoff während der Bestrahlung mit anderen, möglicherweise kurzlebigen Bestrahlungsprodukten reagiert, die nach Bestrahlungsende nicht mehr vorhanden sind.

Als Ergebnis der Untersuchungsreihe bleibt also festzuhalten, daß unterhalb einer Dosisleistung von etwa 57 Gy/h ein etwa 2,6 mm dicker Szintillator aus SCSN-38 sich ständig im ausgeheilten bzw. Endschadenszustand befinden müßte, da der zur Rückbildung des Anfangsschadens notwendige Sauerstoff zu jeder Zeit in ausreichender Menge im Probeninnern vorhanden ist. Damit ist eine wichtige Forderung für den ZEUS-Detektor erfüllt, denn hier liegt die Dosisleistung um Größenordnungen darunter (im Mittel weniger als 0,04 Gy/h).

4.4 Zusammenfassung der Bestrahlungsexperimente

In den vorausgehenden Abschnitten wurde die Strahlungsbeständigkeit von Wellenlängenschiebern auf PMMA-Basis (Y7-Wellenlängenschieber) und von Szintillatoren auf Polystyrolbasis (SCSN-38) untersucht. Dabei ließen sich grundsätzlich zwei Arten von Strahlenschäden feststellen: Bildung neuer Absorptionszentren: Beide Stoffe zeigen einen vergleichbaren Schadensverlauf in sauerstoffhaltiger Atmosphäre: Nach einer Bestrahlung liegt ein optischer Anfangsschaden — je nach Problemstellung mit Fahrtisch oder Spektralphotometer bestimmbar — vor, der im weiteren zeitlichen Verlauf auf einen zeitlich konstanten Endschadenswert zurückgeht (teilweises Ausheilen). Bei PMMA ist manchmal ein sogenannter "build up", also ein Schadensanstieg über einige zehn Tage nach Ende einer Bestrahlung, zu beobachten. Dieser ist in Gegenwart einer trägen Atmosphäre wie Argon oder Stickstoff stärker ausgeprägt als in Luftatmosphäre.

Sauerstoff, der für Ausheilung der Schäden sorgt, diffundiert unterschiedlich schnell in beide Basismaterialien. Dies bewirkt Ausheilzeiten in Luft (Zimmertemperatur, Normaldruck) bei etwa 2,6 mm dicken SCSN-38-Materialstücken von einigen Stunden. In 2 mm dickem PMMA wird unter gleichen Bedingungen eine Ausheilung auf den Endschadenswert erst im Laufe einiger 100 Tage erreicht. Ohne Sauerstoffgegenwart heilen die PMMAbasierenden Stoffe nicht aus.

Auch während einer Langzeitbestrahlung findet in den untersuchten Stoffen Ausheilung statt, wenn Sauerstoff in die Proben hineindiffundieren kann. Für das ZEUS-Wellenlängenschiebermaterial (30 ppm Y7 und 360 nm UV-Absorber in PMMA) findet schon während der Bestrahlung in Luftumgebung (Normaldruck, Zimmertemperatur) eine Ausheilung auf den Endschadenswert statt, wenn die Dosisleistung unterhalb 0,44 Gy/h liegt. Für das ZEUS-Szintillatormaterial SCSN-38 liegt bei gleichen Umgebungsbedingungen stets dann der Endschadenswert vor, wenn die Dosisleistung 57 Gy/h nicht übersteigt.

Zerstörung von Farbstoffmolekülen: Die Dosisabhängigkeit der relativen Farbstoffzerstörung wurde für Szintillatoren SCSN-38 mit $(0,9 \pm 0,2)$ % pro kGy Strahlungsdosis bestimmt. Sie ist bei Bestrahlung in sauerstoffhaltiger Atmosphäre deutlich größer als in inerter Atmosphäre (z.B. Argon). Bei Wellenlängenschiebern ist die Farbstoffzerstörung in Luft $(0,3 \pm 0,1)$ % pro kGy absorbierter Strahlungsdosis.

In den Untersuchungsreihen konnten die Abhängigkeiten der End- und teilweise Anfangsschadenshöhen bei γ - und Neutronen- γ -Mischfeldbestrahlung von der Dosis gemessen und dabei in weiten Dosisbereichen lineare Zusammenhänge festgestellt werden. Die Werte für die Absorptionskoeffizienten aus Fahrtisch- und Spektralphotometermessungen sind in den jeweiligen Abschnitten aufgelistet.

Vergleiche der Auswirkungen von Neutronen- γ -Mischfeld und reinem γ -Strahlungsfeld ließen keine neuen Effekte, die auf dem Neutronenanteil beruhen könnten, erkennen. Die Dosisabhängigkeiten der sich entwickelnden Schäden unterschieden sich im Rahmen der Fehler für die PMMA-Materialien nicht. Im Falle der PS-basierenden Szintillatoren ist die Erzeugung zusätzlicher Absorptionszentren bei Bestrahlung mit Neutronen etwas höher als bei gleicher γ -Dosis. Hierfür sind möglicherweise LET-Effekte verantwortlich.

Bei Farbstoffzerstörungen des SCSN-38 konnten Effekte festgestellt werden, die eine je nach Dosisleistung sehr unterschiedliche Zerstörungsrate erkennen ließen. Dabei wurden auch nichtlineare "Sättigungseffekte" bei höheren Dosen (oberhalb ca. 10 kGy bzw. 25 kGy bei reiner γ bzw. Mischfeldbestrahlung) gemessen. Diese sind möglicherweise auf Temperatureinflüsse, auf Oberflächeneffekte oder auf Sättigungsphänomene in der Radikalentstehung zurückzuführen.

Spezialuntersuchungen an Wellenlängenschiebermaterialien mit verschiedenen Ultraviolettlichtabsorbern lassen den unterhalb 360 nm abschneidenden Absorber als geeignetste Beigabe zum Wellenlängenschieber erscheinen. Einerseits werden kurzwelligere Lichtanteile bis unmittelbar unterhalb der einsetzenden Absorption des Fluoreszenzfarbstoffes Y7 absorbiert und so störende kurzwellige Lichtanteile unterdrückt. Andererseits zeigt dieser Ultraviolettlichtabsorber im Rahmen der ca. 7kGy-Bestrahlungen außer Zerstörungen des Absorbers selbst nahezu keine zusätzlichen Schädigungen im Vergleich zu Materialien völlig ohne Absorber. Durch Beimischung anderer Absorber hingegen entstehen oberhalb ihrer Absorptionskanten teilweise deutliche zusätzliche Absorptionszentren.

Für das ZEUS-Kalorimeter dominieren die Effekte durch Bildung neuer Absorptionszentren wegen der hier großen Lichtwege (20 cm – 200 cm) und der niedrigen mittleren Dosisleistung von weniger als 0,04 Gy/h. Letztere sorgt zudem für ein teilweises Ausheilen der Strahlungsschäden auf den niedrigeren Endschadenswert bei Szintillatoren und Wellenlängenschiebern und minimiert so die zu erwartenden Schadenshöhen.

4.5 Normierung von Fluoreszenzspektren

Wird mit Hilfe des Monochromators im Meßtischaufbau (vergl. Abschnitt 3.1.2) das Fluoreszenzlicht als wellenlängenabhängige Intensitätsverteilung ausgelesen, so ist das aufgenommene Fluoreszenzspektrum mit der spektralen Empfindlichkeit der Apparatur behaftet.





Abbildung 4.14a: Spektrale Empfindlichkeit des Photomultipliers XP 2011, adaptiert nach [Val85].

Abbildung 4.14b: Spektrale Empfindlichkeit der Meßapparatur, bestehend aus PMMA Mattscheibe, PMMA Lichtleiter, Monochromator HR250 und Photomultiplier XP 2011.

Die Kenntnis dieser im folgenden als Apparatefunktion bezeichneten Eigenschaft des Meßaufbaus ist notwendig zur Darstellung normierter Fluoreszenzspektren. Erst bezüglich ihrer Apparateeigenschaften bereinigte Spektren gestatten z.B. den Vergleich von Fluoreszenzspektren, die an unterschiedlichen Aufbauten gewonnen wurden. Gleichung 4.43 zeigt die Umrechnung der gemessenen Instensitätsverteilungen $I_{meg}(\lambda)$ auf die normierte Intensitätsverteilung $I_{norm}(\lambda)$ mit Hilfe der in Anhang A.4 gezeigten spektralen Empfindlichkeit des jeweiligen Aufbaus $A_{epp}(\lambda)$.

$$I_{norm}(\lambda) = \frac{I_{mof}(\lambda)}{A_{app}(\lambda)}.$$
(4.43)

Eine Normierung wird mit Lichtquellen, deren Intensitätsverteilungen bekannt sind, möglich. So kann das Spektrum einer Wolframlampe bekannter Farbtemperartur zur Normierung dienen. Mit in der Literatur tabellierten Emissivitäten für Wolfram kann das so berechnete Spektrum im Vergleich mit dem gemessenen Wolframlampenspektrum zur Bestimmung der Apparatefunktion des benutzten Aufbaus verwendet werden.

84

10

85



Abbildung 4.14c: Spektrale Empfindlichkeit der Meßapparatur, bestehend aus Monochromator HR250 und Photomultiplier XP 2011.

Abbildung 4.14d: Spektrale Empfindlichkeit der Meßapparatur, bestehend aus Monochromator HR250 und Photomultiplier R 580.

Der Meßtischaufbau mit Monochromator wurde zu verschiedenen Zwecken mit variierenden Konfigurationen verwendet. So wurde bei ortsabhängiger Fluoreszenzanregung zur Messung des Abschwächverhaltens mit Mattscheibe und Lichtleiter im Strahlengang gearbeitet. Als Detektor diente ein Photomultiplier des Typs XP 2011 der Firma Valvo. Bei in Reflexion angeregten Fluoreszenzen, wie sie bei der Untersuchung neutronenbestrahlter Szintillatoren durchgeführt wurden, konnte auf Mattscheibe und Lichtleiter verzichtet werden. Außerdem kam teilweise auch ein anderer Photomultiplier des Typs R 580 der Firma Hamamatsu zum Einsatz.

Deshalb seien an dieser Stelle die spektralen Empfindlichkeiten der verwendeten Konfigurationen genannt. Die Abbildungen 4.14a-d zeigen die spektralen Empfindlichkeiten des Photomultipliers XP 2011 (4.14a) und der Gesamtaufbauten bestehend aus Mattscheibe mit Lichtleiter, Monochromator und Photomultiplier XP 2011 (4.14b), nur aus Monochromator und Photomultiplier XP 2011 (4.14c) sowie aus Monochromator und Photomultiplier R 580 (4.14d). In Tabelle 4.5 sind in 25 nm Schritten die Werte zu den Abbildungen genannt. Die Apparatefunktionen skalieren als Strahlungsdichten ($\propto Wm^{-2}sr^{-1}$). Näheres hierzu und zur Berechnung der Apparatefunktionen findet sich in Anhang A.4.

4.6 Vergleichbarkeit Spektralphotometer – Fahrtisch

4.6.1 Vorteile der jeweiligen Verfahren

Das Spektralphotometer eignet sich im Bereich der Absorption der untersuchten Materialien bei einer typischen Probendicke von einigen Millimetern sehr gut zur Messung der Abschwächlän-

Tabelle 4.16: Spektrale Empfindlichkeiten verschiedener Meßtischkomponenten. Die Werte für die drei Meßtischaufbauten A, sind auf den Maximalwert 1 skaliert.

λ (nm)	ske * (mA/W)	A_{L+M+X} (willk. E.)	A _{M+X} ^c (willk. E.)	A_{M+H} (willk. E.)
300	9,5	0,00	0,05	0,04
325	33	0,00	0,36	0,36
350	50	0,00	0,74	0,82
375	63	0,01	0,85	0,98
400	74	0,62	0,90	0,98
425	82	0,97	0,94	0,95
450	84	1,00	1,00	0,87
475	80	0,93	0,96	0,74
500	72	0,72	0,77	0,60
525	58	0,54	0,58	0,42
550	43	0,40	0,42	0,27
575	30	0,23	0,25	0,17
600	19	0,10	0,10	0,11
625	9,8	0,03	0,02	0,60
650	4,3	0,01	0,00	0,31
675	1,6	0,00	0,00	0,01

Spektrale Empfindlichkeit des Photomultipliers XP 2011, nach [Val85].

* Spektrale Empfindlichkeit f
ür Aufbau aus Mattscheibe, Lichtleiter, Monochromator und XP 2011 Photomultiplier.

^c Spektrale Empfindlichkeit f
ür Aufbau aus Monochromator und XP 2011 Photomultiplier.

Spektrale Empfindlichkeit f
ür Aufbau aus Monochromator und R 580 Photomultiplier.

Fehler: $\delta sk_e = \pm 5\% \cdot sk_e$; $\delta A_1 = \pm 0.05$.

gen bzw. Absorptionskoeffizienten. Wächst aber die Abschwächlänge auf über etwa 500 mm an, was in den Emissionsbereichen der untersuchten Materialien zutrifft, so liegen die gemessenen Transmissionen sehr nahe an den Werten ideal klarer Proben von etwa 92%. Dann spielen Unzulänglichkeiten der Oberflächenbeschaffenheit eine so große Rolle, daß der Fehler in der Absorptionskoeffizientenbestimmung sehr groß wird.

Einen geeigneteren Aufbau zur Vermessung der Emissionsbereiche stellt dagegen der Fahrtisch dar. Hier sind mit Monochromator Bestimmungen von Abschwächlängen im Bereich von einigen Zentimetern bis hin zu einigen Metern möglich, wenn von Probenlängen von ca. 20 cm ausgegangen wird. Im Vergleich zu den Transmissionsmessungen wird also die durchleuchtete Materialdicke vergrößert, was allerdings auf Kosten der Nachweisbarkeit kleinerer Abschwächlängen geht. Ohne Monochromator ähnelt der Aufbau der Anordnung in einem Samplingkalorimeter, wie z.B. dem ZEUS-Kalorimeter. Aus diesem Grund wurden zahlreiche Untersuchungen an Wellenlängenschiebern und Szintillatoren mit diesem Aufbau vorgenommen. Hierbei muß aufgrund kleinerer Testproben im Meßaufbau im Vergleich zur realen Kalorime-

88

terumgebung allerdings das Problem der Übertragbarkeit von Erkenntnissen auf andere Geometrien berücksichtigt werden.

Abbildung 4.17 zeigt die Anwendungsbereiche beider Aufbauten über einen Spektralbereich von 250 – 600 nm am Beispiel einer Wellenlängenschieberprobe. Damit umschließt der insgesamt erfaßte Spektralbereich sowohl Emission als auch Absorption des im Material befindlichen Farbstoffes Y7. Die Bestimmung der Absorptionskoeffizienten $\mu(\lambda)$ erfolgte jeweils entprechend der Gleichungen 3.2 und 3.11, letztere nach einer weiter unten erklärten geometrisch bedingten Korrektur der Fahrtischdaten.

Es hängt somit von der zu untersuchenden Fragestellung (z.B. optische Prüfung des Emissions- oder Absorptionsbereiches) ab, welches Verfahren die besten Resultate liefert. Sollen beide Verfahren direkt miteinander verglichen oder gemeinsam zu einer Aussage kombiniert werden, muß bedacht werden, daß die Lichtausbreitung in beiden Fällen sehr unterschiedlich erfolgt, was sich stark auf die absolut gemessenen Absorptionskoeffizienten auswirken kann.

4.6.2 Unterschiede in den Meßverfahren

Bei der Spektralphotometermessung durchsetzt ein nahezu paralleles Lichtstrahlenbündel eine sehr dünne Probe. Der vom Licht zurückgelegte Weg stimmt also mit der Probendicke gut überein. Ein so bestimmtes $\mu(\lambda)$ kann nach Berücksichtigung der Oberflächenreflektionen (vergl. Gl. 3.2) als Materialeigenschaft verstanden werden, die im wesentlichen unabhängig von der Probengeometrie ist.

Anders ist dies bei den Fahrtischmessungen. Hier werden ortsabhängig über einige zehn Zentimeter in einer Probe Farbstoffmoleküle zur Fluoreszenz angeregt. So angeregt strahlen diese isotrop in alle Richtungen, wodurch die Auslesefläche einer Probe nach unterschiedlich langen Lichtwegen erreicht wird. So sind Lichtwege, die über Mehrfachreflexionen an den Probenbegrenzungen führen, länger als jene, die unter kleinen Winkeln zur optischen Achse abgestrahlt werden und direkt zur Auslesefläche gelangen. Ein mittlerer Lichtweg des Fluoreszenzlichtes bei einer Fahrtischmessung ist also größer als der Abstand des Ortes der Lichtanregung zur Auslesefläche und täuscht somit — bei Anpassung gemäß Gleichung 37 bzw. 3.11 mit dem Anregungsort auf der Probe als Koordinate x — einen vergrößerten Absorptionskoeffizienten gegenüber den Transmissionsmessungen vor. Bei Mehrfachreflexionen an den Seitenflächen einer Probe spielt in der Praxis zudem die optische Qualität dieser Flächen eine Rolle. Nicht ideal reflektierende Oberflächen bewirken eine weitere Abschwächung.

Um die aus beiden Meßverfahren gewonnenen Absorptionskoeffizienten vergleichbar zu machen, muß dies berücksichtigt und mittels Korrekturfunktionen die Umrechnung der mit dem Meßtisch gewonnenen Absorptionskoeffizienten vorgenommen werden.

Im folgenden und — konkret berechnet — in Anhang A.2 wird zunächst ein vereinfachtes analytisches Verfahren dazu vorgestellt. Eine genauere Berechnung schließt sich im darauf folgenden Abschnitt an.

4.6.3 Näherungsweise Umrechnung der Absorptionskoeffizienten

Es wird vorausgesetzt, daß die Probe ideale Quadergeometrie aufweist (zueinander senkrechte Flächen) und daß die optischen Grenzflächen ideal sind. Damit wird davon ausgegangen, daß Lichtstrahlen unterhalb des Grenzwinkels der Totalreflexion die Probe an der Grenzfläche vollständig verlassen und Lichtstrahlen oberhalb des Grenzwinkels zu 100 % innerhalb der Probe reflektiert werden. Ferner wird eine Selbstabsorption des Fluoreszenzlichtes durch die Farbstoffe mit anschließender Reemission vernachlässigt. Bei ideal punktförmiger Lichtquelle (Farbzentrum im Materiał) mit isotroper Abstrahlung wird der mittlere Lichtweg bis zur Auslesefläche der Probe durch Integration über eine Kugelfläche berechnet. Dabei ergibt sich ein gegenüber der Wegstrecke Anregungsort-Auslesefläche längerer mittlerer Lichtweg, der bei einfach exponentiellem Abschwächungsansatz näherungsweise auf den gemessenen Absorptionskoeffizienten übertragen werden kann. Dazu muß der aus Anpassung an die experimentellen Daten gewonnene Absorptionskoeffizient der quaderförmigen Probe durch den in Anhang A.2 berechneten wellenlängenunabhängigen Korrekturfaktor dividiert werden:

$$\mu_{\text{Trans}}(\lambda) = \mu_{\text{Tisch}}(\lambda) \cdot \begin{cases} 1/1, 13 &: \text{ für Polystyrol, } n = 1, 6\\ 1/1, 15 &: \text{ für Polymethylmethacrylat, } n = 1, 5 \end{cases}$$
(4.44)

Auf diese Weise wird eine einfache Umrechnung der Fahrtischergebnisse ($\mu_{\text{Tirch}}(\lambda)$) auf den tatsächlichen Absorptionskoeffizienten gewonnen, der in guter Näherung direkt mit dem Spektralphotometer ($\mu_{\text{Tirans}}(\lambda)$) gemessen werden kann.

Starke Vereinfachungen dieses Verfahrens sind die vereinfachte Übertragung des mittleren Lichtweges auf den Absorptionskoeffizienten des Materials, die fehlende Berücksichtigung der optischen Oberflächenqualität und die notwendige Gewinnung einer effektiven Rückwandreflektivität aus Meßdaten.

Zur Lösung dieser Probleme wird im anschließenden Abschnitt ein numerisches Simulationsverfahren vorgestellt, das die genannten Punkte in die Rechnung einbezieht.

89

4.7 Numerische Simulation der Lichtausbreitung in Quadern



Abbildung 4.15: Quaderförmige Probe mit Fluoreszenzfarbstoffen. Entlang der optischen Achse zwischen Rückwand und Auslesefläche werden die Farbmoleküle ortsabhängig zur Fluoreszenz angeregt. Zwei Lichtkegel mit dem Öffnungswinkel des Grenzwinkels der Totalreflektion im Quader deuten die Lichtwege an, über die das Simulationsprogramm summiert.

Ein wichtiges Ziel der Simulationsrechnung ist die Umrechnung der mit dem Fahrtisch gemessenen geometriebehafteten Absorptionskoeffizienten auf geometrieunabhängige Werte, wie sie z.B. aus Transmissionsmessungen hervorgehen. Auf dieser Grundlage wird es möglich, gemessene Absorptionskoeffizienten rechnerisch auf andere Geometrien zu übertragen. Ein konkretes Beispiel hierfür sind zahlreiche Messungen am Fahrtisch ohne Monochromator, in denen z.B. bestrahlte und unbestrahlte Wellenlängenschieberproben vermessen und die Differenz ihrer effektiven Absorptionskoeffizienten $\Delta \vec{\mu}$ zur Bewertung des Strahlenschadens herangezogen werden. Da die Maße der Testexemplare aus experimentellen Gründen völlig andere sind (z.B. 250 mm Länge und 40 mm Breite) als die realer Detektorelemente (z.B. 1700 mm Länge und 200 mm Breite), ist die Frage der Übertragbarkeit der Resultate von großer Wichtigkeit.

Zur numerischen Summation aller Lichtintensitäten an der Auslesefläche einer quaderförmigen Probe, hervorgerufen durch Anregung der Fluoreszenzfarbstoffe in der Probe, wurde die Computersimulation "quaderatten" in der Programmiersprache "C" entwickelt (Quelltext a. Anhang A.3). Das Programm summiert in der vorzugebenden Quadergeometrie alle als möglich angesehenen von einer punktförmigen Quelle ausgehenden Lichtwege zu einer Gesamtintensität an einer definierten Auslesefläche (Abb. 4.15). Dabei wird idealisierend angenommen, daß alles Licht, welches die Auslesefläche durchdringt, auch vom Detektor akzeptiert wird. Ausgangspunkt für die Berechnung ist eine Datei, die wellenlängenabhängig über das interessierende Wellenlängenintervall hinweg die Fluorezenzintensität $I_0(\lambda)$ unmittelbar nach Emission (und damit ohne wellenlängenabhängige Abschwächung) und den Absorptionskoeffizienten $\mu(\lambda)$ enthält (Tabelle A.1). Die Daten hierzu sind das Ergebnis von Mittelungen aus Messungen (Transmissionsspektren, Fluoreszenzspektren, Abschwächkurven) an unbestrahlten Referenzproben. Die errechnete Intensität an der Auslesefläche kann ortsabhängig über das Emissionswellenlängenspektrum summiert oder ohne Integration über λ auch wellenlängenabhängig ausgegeben werden. Alle Orte der Anregung werden auf der optischen Achse zwischen Rückwand und Auslesefläche angesiedelt (Abb. 4.15), der Abstand zur Auslesefläche z kennzeichnet somit eindeutig den Anregungsort.

Als mögliche Lichtwege gelten alle in einem Kegel um die optische Achse eingeschlossenen Raumrichtungen. Der Öffnungswinkel dieses Kegels ist durch den Materialbrechungsindex bestimmt und ist gleich dem Grenzwinkel der Totalreflektion im Quadermaterial ϑ_{grenz} . Alle anderen Lichtwege verlassen den Quader durch eine andere als die Signalauslesefläche oder bleiben aufgrund "ewiger Totalreflexion"⁷ in der Probe gefangen, so daß sie nicht zum ausgelesenen Gesamtsignal beitragen. Für Lichtwege, welche die Ausleseseite oder die ihr gegenüberliegende Rückwand der Probe erreichen, werden mit Hilfe der Fresnelschen Gleichungen die reflektierten bzw. transmittierten Intensitätsanteile bestimmt.

Neben den schon erwähnten Eigenschaften verfügt das Programm über die Möglichkeit, die Quaderoberflächen mit Reflexionskoeffizienten zu behaften. Damit kann der Einfluß von z.B. unzureichender Politur o.ä. auf die Lichtausbreitung studiert werden.

Das Programm kann individuell auf Probengeometrie, Oberflächenqualität, Brechungsindex und Farbstoffdotierung (mittels wellenlängenabhängiger Emission und Absorption) eingestellt werden. Es eignet sich damit zur Simulation von Lichtwegen in verschiedenen Stoffen. Einstellbar sind außerdem die gewünschten Anregungsorte und die Feinheit der Raumwinkelunterteilung bei den Berechnungen.

Nicht berücksichtigt werden andere als Quadergeometrien, Rayleighstreuung im Material und Selbstabsorption mit anschließender Reemission, sowie Anregungsorte abseits der optischen Achse. Zudem wird davon ausgegangen, daß der zu untersuchende Quader an seiner Auslesefläche keinen optischen Kontakt zum Detektor hat.

Der Programmquelltext befindet sich im Anhang A.3, eine Erläuterung der wichtigsten Eingabeparameter folgt im Abschnitt 4.7.3.

4.7.1 Verfahren zur Bestimmung der Lichtabschwächung

In diesem Unterabschnitt wird die Lichtausbreitung im Quader theoretisch beleuchtet. Anschließend erfolgt die praktische Umsetzung für ein Computerprogramm.

Berechnung der Lichtwege

Aus Gründen der Übersichtlichkeit wird zunächst die Berechnung der Lichtabschwächung für einzelne Lichtwege gezeigt. Als erstes werden nach Emission auf die Auslesefläche gerichtete "direkte Lichtwege" betrachtet. Anschließend folgt die entgegensetzte "indirekte" Abstrahlungsrichtung. Dann werden beide Anteile zusammengeführt und schließlich über alle Raumwinkel und Wellenlängen integriert, um die Gesamtintensität zu bestimmen.

⁷Das gilt, wenn der Winkel der Totalreflexion ϑ_g im Material kleiner 45° ist, für Abstrahlungswinkel ϑ mit $\vartheta_g < \vartheta < 90^\circ - \vartheta_g$

"Direkter Lichtweg" zur Ausleseseite: Bei Fluoreszenzanregung im idealen Quader tragen die zwei in Abbildung 4.15 gezeigten Lichtkegel zur gemessen Intensität bei. Die orts-, wellenlängen- und raumwinkelabhängige Intensität eines Lichtstrahles des zur Auslesefläche gerichteten Kegels setzt sich zusammen aus einem Anteil, der die Auslesefläche unmittelbar durchdringt und aus Anteilen, die an der Ausleseseite und dann an der Rückwand der Probe einfach bzw. mehrfach reflektiert werden, bevor sie durch die Ausleseseite in den Detektor gelangen.

Diese Transmission bzw. Reflexion an Auslessesite $(T_A(\vartheta)$ bzw. $R_A(\vartheta))$ und Rückwand $(T_R(\vartheta)$ bzw. $R_R(\vartheta))$ werden durch die Fresnelschen Gleichungen beschrieben. So folgt bei gleichen Anteilen parallel und senkrecht polarisierten Lichtes aus diesen:

$$R(\vartheta) = 1 - T(\vartheta) \tag{4.45}$$

$$= \frac{1}{2} \left(\left(\frac{\sqrt{n^2 - \sin^2 \vartheta} - \cos \vartheta}{n^2 - 1} \right)^2 + \left(\frac{n^2 \cos \vartheta - \sqrt{n^2 - \sin^2 \vartheta}}{n^2 \cos \vartheta + \sqrt{n^2 - \sin^2 \vartheta}} \right)^2 \right)$$
(4.46)

mit:

n relativer Brechungsindex,

Ø Einfallswinkel zur Grenzflächennormalen

Die folgende Gleichung beschreibt den unmittelbar die Probe verlassenden Intensitätsanteil eines direkten Lichtstrahls $I_{d0}(x, \lambda, \varphi, \vartheta)$ (vgl. Abb. 4.15):

$$I_{d0}(x,\lambda,\varphi,\vartheta) = I_0(\lambda) \cdot R_{setit}^{N_{min}(x,\varphi,\vartheta)} \cdot R_{deck}^{N_{deck}(x,\varphi,\vartheta)} \cdot T_A(\vartheta) \cdot e^{-\mu(\lambda)\frac{x}{\cos\vartheta}}$$
(4.47)
mit:

- x : Abstand des Anregungsortes von der Auslesefläche,
- λ : Wellenlänge der Emission,
- φ : Azimutwinkel, s. Abb. 4.15
- θ : Polarwinkel, gemessen gegen Längsachse
- $I_0(\lambda) \cdot d\lambda \cdot d\Omega$: Intensität im Wellenlängenintervall $(\lambda, \lambda + d\lambda)$, die in den Raumwinkel $d\Omega$ abgestrahlt wird,
 - R.... Reflexionsvermögen der Seitenflächen des Quaders.

 - R_{deck}: Reflexionsvermögen der Deckflächen des Quaders,
 - N: Anzahl der Reflexionen an den Quaderflächen, mit den Indices:
 - dech : für Deckflächen des Quaders,
 - mit : für Seitenflächen des Quaders,
 - $T_A(\vartheta)$: Anteil des Lichtes, der die Ausleseseite durchdringt,
 - $\mu(\lambda)$: wellenlängenabhängiger Absorptionskoeffizient.

Gleichung 4.47 berücksichtigt neben der exponentiellen Abschwächung im Materialvolumen auch die Abschwächung durch Totalreflexionseinbußen an den Seit- und Deckflächen der Proben. Pro Reflexionsvorgang verringert sich die Intensität des Lichtstrahls um den Faktor R_{seit} bzw. R_{deck} . Die Anzahl der Reflexionen N wird mit einer einfachen geometrischen Überlegung abgeschätzt:

92

$$\begin{split} N_{mit}(x,\varphi,\vartheta) &= \operatorname{int}\left(\left|\frac{x\tan\vartheta\cos\varphi}{B_{mit}}\right| + \frac{1}{2}\right), \quad (4.48)\\ N_{teat}(x,\varphi,\vartheta) &= \operatorname{int}\left(\left|\frac{x\tan\vartheta\sin\varphi}{B_{teat}}\right| + \frac{1}{2}\right), \\ & \text{mit:}\\ & \operatorname{int}(\ldots): \text{ "Integer"-Funktion, schneidet Nachkommateil des Arguments ab,}\\ & B_{mit}: \text{ Abstand der Seitenflächen,} \end{split}$$

Beek : Abstand der Deckflächen

Hierbei sind φ wieder der Azimutwinkel des Lichtstrahls um die optische Achse und ϑ der Winkel zur optischen Achse aus Abbildung 4.15. Es wird in der weiteren Rechnung etwas vereinfachend benutzt, daß die Anzahl der Reflexionen an einer Seitenfläche bei einer Entfernung x = a + b von der Ausleseseite gleich der Summe der Anzahl der Reflexionen in der Entfernung a und der Anzahl der Reflexionen in der Entfernung b von der Ausleseseite ist, also $N_{drat}(a + b, \varphi, \vartheta) \approx N_{drat}(a, \varphi, \vartheta) + N_{drat}(b, \varphi, \vartheta)$.

Der Anteil des Lichtes, der nicht sofort durch die Auslessesite auf den Photomultiplier gelangt, wird reflektiert, läuft unter Abschwächung in Richtung Rückwand, wird dort zum Teil reflektiert, läuft wieder zur Auslessesite, tritt hier teilweise aus und wird detektiert. Die daraus resultierende nachweisbare Intensität $I_{d1}(x, \lambda, \varphi, \vartheta)$ liefert:

$$I_{d1}(x, \lambda, \varphi, \vartheta) = I_{d0}(x, \lambda, \varphi, \vartheta) \cdot R_{\text{set}}^{N_{\text{set}}(2L, \varphi, \vartheta)} \cdot R_{\text{deck}}^{N_{\text{deck}}(2L, \varphi, \vartheta)} \cdot R_{\text{deck}}^{N_{\text{deck}}(2L, \varphi, \vartheta)} \cdot R_{A}(\vartheta) \cdot R_{R}(\vartheta) \cdot e^{-\mu(\lambda)\frac{2L}{\cos \vartheta}}$$
(4.49)

mit:

- L Abstand der Rückwand von der Auslesefläche,
- $R_A(\vartheta)$ Anteil des Lichtes, der an der Ausleseseite reflektiert wird,
- $R_R(\vartheta)$ Anteil des Lichtes, der an der Rückwand reflektiert wird.

Wird der Lichtstrahl nicht nur einmal, wie Gl. 4.49 beschrieben, sondern *n*-fach über den Weg Auslesekante – Rückwand – Auslesekante reflektiert, bevor er schließlich detektiert werden kann, so verbleibt die Intensität $I_{dn}(x, \lambda, \varphi, \vartheta)$:

$$I_{dn}(x,\lambda,\varphi,\vartheta) = I_{d0}(x,\lambda,\varphi,\vartheta) \cdot R_{seit}^{N_{reit}(n\cdot 2L,\varphi,\vartheta)} \cdot R_{deck}^{N_{deck}(n\cdot 2L,\varphi,\vartheta)} \cdot R_{A}(\vartheta)^{n} \cdot R_{R}(\vartheta)^{n} \cdot e^{-\mu(\lambda)\frac{n\cdot 2L}{\cos\vartheta}}.$$
(4.50)

Die Gesamtintensität $I_d(x, \lambda, \varphi, \vartheta)$ an der Ausleseseite, die durch einen in Richtung Ausleseseite startenden Lichtstrahl detektiert werden kann, läßt sich als unendliche Summe der vorstehenden Gleichungen schreiben:

$$\begin{split} I_{d}(x,\lambda,\varphi,\vartheta) &= \sum_{i=0}^{\infty} I_{di}(x,\lambda,\varphi,\vartheta) \\ &= I_{d0}(x,\lambda,\varphi,\vartheta) \cdot \sum_{i=0}^{\infty} \left(R_{eeit}^{N_{evit}(2L,\varphi,\vartheta)} \cdot R_{deck}^{N_{evit}(2L,\varphi,\vartheta)} \cdot R_{A}(\vartheta) \cdot R_{R}(\vartheta) \cdot e^{-\mu(\lambda)\frac{2L}{\cos\vartheta}} \right)^{i}. \end{split}$$

Weil das Produkt in der Klammer stets einen Wert kleiner 1 liefert, kann unter gleichzeitiger Verwendung der Beziehung 4.47 umgeformt werden:

$$I_{d}(x,\lambda,\varphi,\vartheta) = \frac{I_{0}(\lambda) \cdot R_{reit}^{N_{reit}(x,\varphi,\vartheta)} \cdot R_{deck}^{N_{deck}(x,\varphi,\vartheta)} \cdot T_{A}(\vartheta) \cdot e^{-\mu(\lambda)\frac{2}{\cos\theta}}}{1 - R_{seit}^{N_{reit}(2L,\varphi,\vartheta)} \cdot R_{deck}^{N_{deck}(2L,\varphi,\vartheta)} \cdot R_{A}(\vartheta) \cdot R_{R}(\vartheta) \cdot e^{-\mu(\lambda)\frac{2L}{\cos\theta}}}.$$
 (4.51)

"Indirekter Lichtweg" zur Ausleseseite: Hier sei nun der zweite Lichtkegel betrachtet, der zur Probenrückwand zeigt. Ein in diese Raumhälfte ausgesandter Lichtstrahl muß vor seiner Detektion zunächst an der Rückwand reflektiert werden und dann die Ausleseseite durchdringen. Somit lautet die meßbare Intensität für diesen Lichtweg $I_{10}(x, \lambda, \varphi, \vartheta)$:

$$I_{s0}(x,\lambda,\varphi,\vartheta) = I_0(\lambda) \cdot R_{seit}^{N_{seit}(2L-x,\varphi,\vartheta)} \cdot R_{deck}^{N_{deck}(2L-x,\varphi,\vartheta)} \cdot R_A(\vartheta) \cdot T_A(\vartheta) \cdot e^{-\mu(\lambda)\frac{2L-x}{\cos\theta}}.$$
 (4.52)

Die folgenden Ordnungen mehrfach reflektierter Lichtwege (Ausleseseite - Rückwand - Ausleseseite) vollziehen sich analog zur vorangegangenen Betrachtung und führen schließlich zum Ausdruck für die Gesamtintensität eines in Richtung Rückwand emittierten Lichtstrahls $I_{\bullet}(x,\lambda,\varphi,\vartheta)$:

$$I_{s}(x,\lambda,\varphi,\vartheta) = \frac{I_{0}(\lambda) \cdot R_{seit}^{N_{seit}(2L-x,\varphi,\vartheta)} \cdot R_{deck}^{N_{deck}(2L-x,\varphi,\vartheta)} \cdot R_{A}(\vartheta) \cdot T_{A}(\vartheta) \cdot e^{-\mu(\lambda)\frac{2L-x}{\cos\vartheta}}}{1 - R_{seit}^{N_{seit}(2L,\varphi,\vartheta)} \cdot R_{deck}^{seit} \cdot R_{A}(\vartheta) \cdot R_{R}(\vartheta) \cdot e^{-\mu(\lambda)\frac{2L}{\cos\vartheta}}}.$$
 (4.53)

Zusammenfassung direkter und indirekter Lichtwege: Nach der Anregung der Farbstoffe erfolgt die Emission kugelförmig in alle Raumrichtungen. Aus obengenannten Gründen sind für die Intensitätsmessung an der Ausleseseite aber nur die beiden in Abbildung 4.15 gezeigten Lichtkegel von Bedeutung. Um die nachfolgende Integration über alle Raumwinkel zu vereinfachen, wird von einer gleichzeitigen Emission zweier Lichtstrahlen symmetrisch - also mit gleichen Winkeln φ und ϑ — in beide Lichtkegel ausgegangen. Die Gesamtintensität eines solchen Emissionsvorgangs ist dann die Summe⁴ aus den Gleichungen 4.51 und 4.53. Die Gesamtintensität Igreamt für ein solches Lichtstrahlenpaar lautet also:

$$I_{getamt}(x, \lambda, \varphi, \vartheta) = \frac{I_0(\lambda) \cdot T_A(\vartheta)}{1 - I_{kern}(2L, \lambda, \varphi, \vartheta) \cdot R_A(\vartheta) \cdot R_R(\vartheta)} \cdot (I_{kern}(x, \lambda, \varphi, \vartheta) + R_R(\vartheta) \cdot I_{kern}(2L - x, \lambda, \varphi, \vartheta)) \quad (4.54)$$

mit:
$$I_{kern}(x, \lambda, \varphi, \vartheta) = R_{seit}^{N_{exis}(x,\varphi,\vartheta)} \cdot R_{deck}^{N_{deck}(x,\varphi,\vartheta)} \cdot e^{-\mu(\lambda)\frac{x}{\cos\theta}}.$$

Integration über Wellenlänge und Raumwinkel

Um die Signalantwort einer quaderförmigen Probe mit eingelagerten Farbstoffmolekülen an der Ausleseseite $I(x, \lambda)$ berechnen zu können, muß Gleichung 4.54 über alle in Frage kommenden Raumwinkel integriert werden. Dies geschieht am besten unter Verwendung von Kugelkoordinaten:

$$I(x,\lambda) = \int_{0}^{\theta_{greas}} d\vartheta \sin \vartheta \int_{0}^{2\pi} d\varphi I_{greass}(x,\lambda,\varphi,\vartheta). \qquad (4.55)$$

Ein weitere Integration über alle Wellenlängen des Emissionsintervalls $[\lambda_a, \lambda_c]$ liefert schließlich die integrale Signalantwort $\overline{I}(x)$, wie sie ohne Monochromatoreinsatz detektiert wird:

$$\vec{I}(x) = \int_{\lambda_*}^{\lambda_*} d\lambda I(x, \lambda). \qquad (4.56)$$

Konkrete Berechnung des Integrals: Zur numerischen Berechnung des Integrals im Rechenprogramm muß Gleichung 4.56 in eine Summenschreibweise überführt werden. Anhang A.3 beschreibt diesen Vorgang und zeigt die praktische Ausführung anhand des Quelltextes des Programms "quaderatten".

Zur Berücksichtigung spektraler Detektorempfindlichkeiten kann $I_0(\lambda)$ z.B. mit Apparatefunktionen (vgl. Abschnitt 4.5) behaftet werden. Auf diese Weise ist eine flexible Annassung auf unterschiedliche experimentelle Bedingungen (verschiedene Photomultipliertypen, Farbfilter, Monochromator) möglich.

4.7.2 Der Basisdatensatz zur Simulationsrechnung

Das wichtigste Werkzeug zur konkreten Berechnung der Lichtausbreitung in quaderförmigen Proben ist der Basisdatensatz, der abhängig von der Wellenlänge λ den Absorptionskoeffizienten $\mu(\lambda)$ und die realtive Intensität des Fluoreszenzlichtes am Anregungsort $I_0(\lambda)$ in Tabellenform enthält.

Die Fluoreszenzintensität

Die Simulationsrechnung benötigt als wellenlängenabhängige Fluoreszenzlichtverteilung $I_0(\lambda)$ idealerweise das direkt von einem Farbstoffmolekül emittierte Licht, das keine wellenlängenabhängige Abschwächung durch Umgebungsmaterial erfahren hat.



Abbildung 4.16: Monochromatische Fluoreszenzlichtauslese bei streifender Anregung.

SCSN 38 sind es einige $10 \,\mu m$.

Da in der Praxis die Farbstoffe in einem Festkörper aus z.B. PMMA oder PS vorliegen, kann das Ideal nicht erreicht werden. Durch ein spezielles Meßverfahren ist es aber möglich, das Spektrum genügend nah am Anregungsort aufzunehmen. Für größere Abstände der Lichtauslese vom Anregungsort kann hieraus die Intensitätsverteilung errechnet werden

Bei der experimentellen Bestimmung der Fluoreszenzintensitäten des Basisdatensatzes werden unterschiedliche Probenstücke des gleichen Materials an einer sehr glatten Oberfläche mit streifend einfallendem Licht angeregt. Ein direkt vor derselben Oberfläche positionierter Monochromator mit angeschlossenem Photomultiplier mißt die monochromatische Intensität (Abb. 4.16). Das anregende Licht dringt dabei etwa "eine Abschwächlänge" tief in die Probe ein, was etwa der vom Fluoreszenzlicht wieder bis zur Probenoberfläche zurückgelegten Wegstrecke entspricht. Beim

Wellenlängenschieber mit 30 ppm Y7 liegt diese Strecke im Bereich mm, beim Szintillator

94

^{*}Strenggenommen müßte zur Normierung noch die Summe halbiert werden. Dies wird nicht beachtet, weil absolute Intensitäten am Ende ohnenhin nicht berechnet werden sollen.

Die so gewonnenen Fluoreszenzspektren werden gemittelt und um die spektralen Empfindlichkeit der Apparatur bereinigt (vergl. Abschnitt 4.5) in den Basisdatensatz aufgenommen (s. Werte $I_{0,ideal}(\lambda)$ in Tabelle A.1).

Soll die spektrale Empfindlichkeit eines realen Detektors $A_{app}(\lambda)$ bei der Simulationsrechnung berücksichtigt werden, so muß die ortsabhängige monochromatische Intensitätsverteilung aus Gleichung 4.55 mit $A_{app}(\lambda)$ multipliziert werden. Dies ist gleichbedeutend (wegen Gl. 4.54) mit der Bildung einer neuen Intensitätsverteilung $I_{0,real}(\lambda)$ durch Multiplikation der spektralen Empfindlichkeit mit $I_0(\lambda)$:

$$I_{0,real}(\lambda) = I_{0,ideal}(\lambda) \cdot A_{app}(\lambda)$$
(4.57)

Wird anstelle $I_0(\lambda)$ das erhaltene $I_{0,real}(\lambda)$ in den Basisdatensatz geschrieben, erfolgt die Berechnung des Abschwächverhaltens durch "quaderatten" für die spezielle "reale" Meßapparatur.

Der Absorptionskoeffizient

Das Simulationsprogramm verlangt einen Absorptionskoeffizienten $\mu(\lambda)$, der frei von geometrischen Einflüssen ist und damit die Voraussetzung für eine erfolgreiche Berechnung verschiedener Geometrien erfüllt. Die experimentelle Ermittlung teilt sich dabei in zwei Bereiche.

Bestimmung des $\mu(\lambda)$ aus Transmissionsmessungen: Transmissionsmessungen liefern die verlangte "Reinheit" des Absorptionskoeffizienten frei von geometrischen Einflüssen, da bei der Messung ein nahezu paralleles Lichtstrahlenbündel senkrecht die Probe durchsetzt. Es müssen lediglich die Oberflächenreflexionen an beiden Grenzflächen berücksichtigt werden (vergl. Abschnitt 3.1.1). Wegen der praktisch verwendeten Probendicken von etwa 2 mm liefert diese Messung bei Abschwächlängen über 10 cm ungenaue Ergebnisse.

Bestimmung des $\mu(\lambda)$ aus Messungen mit dem Fahrtisch: Exponentialanpassungen an mit dem Fahrtisch gewonnenen Abschwächkurven liefern in guter Genauigkeit Abschwächlängen im Bereich einiger Zentimeter bis zu einigen Metern. Damit stellen diese Werte eine gute Ergänzung der Transmissionsmessungen bei der Suche nach $\mu(\lambda)$ für den Basisdatensatz dar. Allerdings müssen hier die verfahrensbedingten Einflüsse der Probengeometrie auf das Abschwächverhalten erkannt und herausgerechnet werden, bevor eine Zusammenführung mit den $\mu(\lambda)$ aus Transmissionsmessungen zum Basisdatensatz möglich wird.

Diese Umrechung wird auf Grundlage von Gleichung 4.55 mit dem Programm "quaderatten" durchgeführt.

Nach den Gleichungen 4.51 bis 4.55 hängt der Wert des Absorptionskoeffizienten aus Tischmessungen $\mu_{Tisch}(\lambda)$ nur vom geometriefreien Absorptionskoeffizienten $\mu(\lambda) = \mu_{Traas}(\lambda)$, von der Probengeometrie und vom Oberflächenreflexionsvermögen ab. $\mu_{Tisch}(\lambda)$ wird daher als Funktion von $\mu_{Trans}(\lambda)$ berechnet. Umgekehrt kann damit aus dem gemessenen $\mu_{Tisch}(\lambda)$ ein korrigierter Wert $\mu_{Trans}(\lambda)$ berechnet werden.

Dazu wird als Basisdatensatz eine Tabelle aus "Wellenlängen", Absorptionskoeffizienten und "Fluoreszenzintensitäten" konstruiert. Die Absorptionskoeffizienten $\mu_{Tranf}(\lambda)$ (s. Tabelle 4.17) sind so gewählt, daß sie die durch Fahrtischmessungen nachweisbaren Größenordnungen geometrieunabhängiger $\mu(\lambda)^9$ umfassen. "Fluoreszenzintensitäten" (=1 gesetzt) und "Wellenlängen"

(als Ordnungsvariable fortlaufend durchnumeriert) haben in der Tabelle nicht ihre eigentliche physikalische Bedeutung, da die Intensitäten nicht über die Wellenlänge aufsummiert werden. Vielmehr erfolgt nach der Berechnung der ortsabhängigen, "monochromatischen" Intensitäten

 $I_{Tisch}(x, \lambda)$ für jede "Wellenlänge" eine Exponentialanpassung gemäß Gleichung 3.7. Diese liefert schließlich die am Meßtisch zu erwartenden Absorptionskoeffizienten $\mu_{Tisch}(\lambda)$ (s. Tabelle 4.17). Damit steht eine Tabelle (4.17) zur Verfügung, die geometrieunabhängige $\mu_{Trans}(\lambda)$ zu qua-

Danie steht eine Tabelle (4.17) zur Verlugung, die geometrieunabhangige $\mu_{Trans}(\lambda)$ zu qua dergeometriebehafteten $\mu_{Tisch}(\lambda)$ in Beziehung setzt.

Tabelle 4.17: Vergleich von Absorptionskoeffizienten ohne geometriebedingte Einflüsse $\mu_{Trans.}$ die z.B. aus Transmissionsmessungen hervorgehen, mit daraus resultierenden geometriebehafteten Absorptionskoeffizienten $\mu_{Tisch.}$ die mit dem Fahrtisch in quaderförmigen Proben^a aus Abschwächkurven gemessen würden. Nach einer Rechnung mit dem Simulationsprogramm "quaderatten".

^µ Tisch (cm ^{−1})	^μ Trans (cm ⁻¹)	μ ^{\$} Trans,Fit (cm ⁻¹)	<u>μTrans,Fit - μTrans</u> μTrans	<u>#Tisch</u> #Trans	<u> HTisch</u> HTrans,Fit
4,917E - 03	1,000E - 03	9,869E - 04	-0,0131	4.92	4.98
6,124 <i>E -</i> 03	2,000E - 03	1,999 <i>E</i> 03	-0,0003	3.06	3.06
7,328 <i>E -</i> 03	3,000E - 03	3,011E - 03	0,0036	2.44	2.43
8,529 <i>E</i> - 03	4,000E - 03	4,021E - 03	0,0051	2,13	2.12
9,728 <i>E</i> - 03	5,000 <i>E</i> - 03	5,029 <i>E</i> - 03	0,0058	1.95	1.93
1,092 <i>E –</i> 02	6,000E - 03	6,036E - 03	0,0061	1.82	1.81
1,212 <i>E</i> – 02	7,000E - 03	7,042 <i>E</i> – 03	0,0060	1.73	1.72
1, 331 <i>E</i> – 02	8,000E - 03	8,048 <i>E</i> 03	0,0060	1,66	1,65
1,449 <i>E -</i> 02	9,000E - 03	9,052E - 03	0,0057	1.61	1.60
1,568E - 02	1,000E - 02	1,005 <i>E –</i> 02	0,0055	1,57	1.56
1, 863<i>E</i> – 02	1,250 <i>E</i> - 02	1,256E - 02	0,0046	1.49	1.48
2,157 <i>E –</i> 02	1,500E - 02	1,506E - 02	0,0037	1,44	1.43
2,449 <i>E –</i> 02	1,750E - 02	1,755 <i>E –</i> 02	0,0028	1 40	1.40
2,740 <i>E</i> 02	2,000E - 02	2,004 <i>E -</i> 02	0,0020	1,37	1.37
3,031E - 02	2,250E - 02	2,253E - 02	0,0013	1.35	1.35
3,320E - 02	2,500 <i>E</i> - 02	2,501E - 02	0,0006	1,33	1.33
3,608 <i>E</i> - 02	2,750E - 02	2,750E - 02	0,0000	1,31	1.31
3,895 <i>E -</i> 02	3,000E - 02	2,999E - 02	-0,0005	1,30	1.30
4,468 <i>E -</i> 02	3,500E - 02	3,496 <i>E –</i> 02	-0,0012	1,28	1.28
5,038 <i>E</i> 02	4,000 <i>E -</i> 02	3,994 <i>E -</i> 02	-0,0016	1,26	1.26
5,606 <i>E –</i> 02	4,500E - 02	4,492E - 02	-0,0017	1,25	1.25
6,172 <i>E -</i> 02	5,000 <i>E</i> - 02	4,992 <i>E -</i> 02	-0,0015	1,23	1.24
6,7 3 7 <i>E -</i> 02	5,500E - 02	5,494 <i>E –</i> 02	-0,0011	1,22	1.23
7,300 <i>E</i> – 02	6,000E - 02	5,998 <i>E ~</i> 02	-0,0004	1,22	1.22
7,863E - 02	6,500 <i>E</i> – 02	6,503 <i>E</i> - 02	0,0005	1,21	1.21
8,425 <i>E</i> - 02	7,000 <i>E</i> - 02	7,011 <i>E –</i> 02	0,0016	1,20	1.20

^a Die gewählte Geometrie der Probe in der Simulation entspricht den Abmessungen der Probenstücke, welche zur Erzeugung des Basisdatensatzes herangezogen wurden: 250 × 40 × 2 mm³. Die Seitenwandreflektivität wurde nach Vergleichen mit Meßkurven (s.o.) mit 96 %, die Deckflächenreflektivität mit 100 % angesetzt.

Geometriebefreiter Absorptionskoeffizient aus dem empirischen Anpassungspolynom 2. Grades (Gl. 4.59).

Zur Vereinfachung der praktischen Rechnungen in "quaderatten" wird in einem weiteren Schritt eine empirische Fitfunktion erstellt, die eine Umrechnung der geometriefreien auf geo-

⁹Bereich: 1 · 10⁻³ cm⁻¹ bis 7 · 10⁻² cm⁻¹; wurde iterativ mit "quaderatten" ermittelt.

98

metriebehaftete Absorptionskoeffizienten und umgekehrt in guter Genauigkeit leistet:

$$\mu_{\text{Tirch},\text{Fit}} = P_1 + P_2 \cdot \mu_{\text{Trans}} + P_3 \cdot \mu_{\text{Trans}}^2 \qquad \text{bzw.} \qquad (4.58)$$

$$\mu_{\text{Trans.,Fit}} = -\frac{P_2}{2P_3} - \sqrt{\frac{P_2^2}{4P_3^2} + \frac{\mu_{\text{Tisch}} - P_1}{P_3}};$$
(4.59)

mit: $P_1 = 3,740 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1},$ $P_2 = 1,194,$ $P_3 = -6,511 \cdot 10^{-1} \text{ cm}$

Gleichung 4.59 läßt sich zu Interpretationszwecken auch schreiben als

$$\mu_{\text{Tisch},\text{Fit}} = \mu_{\text{Trans}} \cdot (P_2 + P_3 \cdot \mu_{\text{Trans}}) + P_1, \qquad (4.60)$$

$$= \mu_{\text{Trans}} \cdot fakt + \Delta \mu_{\text{seit}}.$$
 (4.61)

Dabei beschreiben fakt = $P_2 + P_3 \cdot \mu_{Trans}$ die Verlängerung des Lichtweges durch Zickzackreflexionen und $\Delta \mu_{eeit} = P_1$ zusätzliche Verluste durch Oberflächeneinfluß (schlechte Politur der Seitenflächen). Letzterer wird im Modell zurückgeführt auf den Faktor $R_{eeit}^{N_{evit}}$ (Gl. 4.54).

Tabelle 4.17 stellt alle genannten Werte einander gegenüber. Dabei wird die Notwendigkeit der genaueren Berechnung, wie sie dieser Abschnitt zeigt, gegenüber der einfachen Abschätzung in Beziehung 4.44 deutlich. Letztere gibt für das Wellenlängenschiebermaterial (Brechungsindex 1,5) ein Verhältnis $\mu_{Tisch}(\lambda)/\mu_{Trans}(\lambda)$ von 1,15 an, während dieses Verhältnis in Tabelle 4.17 von 1,20 bis 4,92 variiert. Die Auswirkung der Umrechnung von $\mu_{Tisch}(\lambda)$ auf $\mu_{Trans}(\lambda)$ zeigt auch der Vergleich der Abbildungen 3.11 (unkorrigiert) und 4.17 (im langwelligen Teil korrigiert). Die Oberflächeneffekte in den untersuchten Proben sind also recht groß und dominieren sogar die Gesamtabschwächung bei kleinen $\mu_{Trans}(\lambda)$ (entspricht großen Wellenlängen oberhalb etwa 525 nm). Dabei bestimmt das Verhältnis von Probenbreite B_{seit} (Abstand zwischen den Seitenflächen, s. Gl. 4.48) und Probenlänge die Zahl pro Längeneinheit vorkommender Seitenwandreflexionen und die dadurch hervorgerufene Absorption $\Delta \mu_{seit}$.

Ergebnis der Umrechnung



Abbildung 4.17: Absorptionskoeffizient $\mu_{Trans}(\lambda)$ in Abhängigkeit der Wellenlänge für typische unbestrahlte PMMA Wellenlängenschieberprobe mit 30ppm des Farbstoffs Y7 und Zugabe eines unterhalb 360 nm absorbierenden UV-Absorbers; aus Messungen am Spektralphotometer und Fahrtisch nach Korrektur mit Monochromator (s. Text).

Abbildung 4.17 zeigt das Ergebnis der Zusammenführung von Absorptionskoeffizenten beider Meßverfahren für ein typisches ZEUS Wellenlängenschieberstück (PMMA mit 30 ppm Y7 und mit UV-Absorber unterhalb 360 nm, 250 \times 40 \times 2 mm³). Unterhalb etwa 520 nm sind Werte aus Transmissionsmessungen mit dem Spektralphotometer eingezeichnet. Hier wurden die Oberflächenreflexionen gemäß Gl. 3.2 bzw. Gl. 3.3 herausgerechnet. Oberhalb etwa 470 nm sind Meßwerte eingetragen, die aus Fahrtischmessungen betimmt wurden. Dabei wurden die zunächst nach Exponentialfits erhaltenen Werte mit Gleichung 4.59 korrigiert. Alle Werte sind durch Mittelung der Ergebnisse verschiedener unbestrahlter Proben hervorgegangen.

Beim Vergleich der beiden Kurven fällt auf, daß sie nicht völlig zur Deckung kommen. Bei einer Wellenlänge von 500 nm ist der Absorptionskoeffizient aus Spektralphotometermessungen um einen Faktor 1,3 größer als der aus korrigierten Tischmessungen.

Denkbare Ursache hierfür könnte ein Fehler in der absoluten Wellenlängengenpositionierung beider Meßverfahren liegen: beide Kurven müßten zueinander um etwa 2 nm verschoben werden, um zur Deckung zu gelangen. Aufgrund mechanischer Probleme im Monochromator kamen systematische Wellenlängenunterschiede von 1,5 nm vor (die für den Vergleich der Meßergebnisse am Fahrtisch untereinander ohne Bedeutung sind), am Spektralphotometer sollten systematische Wellenlängenverschiebungen unter 0,5 nm liegen. Da die Werte in Abbildung 4.17 Mittelwerte aus jeweils 6 Einzelmessungen (zeitlich bis zu 1,5 Jahre auseinanderliegend) darstellen, ist ein insgesamt 2 nm großer Wellenlängenfehler unwahrscheinlich.

Als weiterer Verursacher des Unterschiedes in den Absorptionskoeffizienten beider Meßverfahren kann eine teilweise optische Kopplung der Proben mit dem Detektor des Fluoreszenzlichtes am Fahrtisch angesehen werden. Das vorgestellte Modell nimmt eine freistehende quaderförmige Probe an, aus der keine Lichtanteile mit Abstrahlungswinkeln größer als der Grenzwinkel der Totalreflexion in den Detektor gelangen. Teilweise optische Kopplung durch z.B. Kontakt der Probe mit Photomultiplier, Mattscheibe oder Lichtleiter könnte diese Annahme teilweise aufheben und so zu anderen effektiven Absorptionskoeffizienten führen, als Gleichung 4.59 sie beschreibt.

Eine dritte mögliche Erklärung wäre eine teilweise Selbstabsorption des emittierten Fluoreszenzlichtes durch die Fluoreszenzfarbstoffe mit anschließender Reemission. Hierbei würde sich ein zusätzlicher effektiver Absorptionskoeffizient ergeben, der in Gleichung 4.59 bislang nicht berücksichtigt wird.

Zur Klärung der Frage, inwieweit die eben vorgestellten Erklärungsmöglichkeiten für den noch zu beobachtenden Unterschied in beiden Meßverfahren verantwortlich sind, wären zum Teil recht aufwendige weiterführende Untersuchungen erforderlich. Im Rahmen der für dieses Modell zu treffenden allgemeinen Aussagen für das Verhalten einer größeren Probenanzahl liefert das vorgestellte Modell eine gute Genauigkeit, wie die nachfolgenden Rechnungen zeigen. Für den Praxisvergleich mit individuellen, stark streuenden Probenexemplaren ist das Modell dagegen aufgrund variiender Probeneigenschaften (Oberflächenqualität, Abweichungen von der idealen Quaderform bzw. Dickenschwankungen der Platten etc.) nur begrenzt genau verwendbar.

Für die Erstellung des Basisdatensatzes der Simulation "quaderatten" ist eine Interpolation der mit dem Fahrtisch gewonnenen Werte auf die 2 nm Schrittweite der Transmissionsmessungen vorgenommen worden. Der Übergang von Transmissionsdaten auf Fahrtischdaten wurde bei 500 nm vollzogen: Bis 500 nm entstammen die Werte den Transmissionsmessungen, ab und oberhalb 502 nm handelt es sich um geometriekorrigierte und wellenlängeninterpolierte Fahrtischdaten. Die Fluoreszenzintensitäten aus streifender Anregung wurden auf dieselben Wellenlängen interpoliert.

In dieser Form zusammengetragen ergeben die Werte ab 426 nm den Basisdatensatz für die theoretische Berechnung der Lichtabschwächung in Quadern mit "quaderatten". Tabelle A.1 zeigt die Basisdaten für Detektion mit idealem Detektor (d.h. gleiche Ansprechwahrscheinlichkeit für alle Wellenlängen) und Bialkali Photomultiplier (z.B. "XP2011" von Valvo bzw. "R580" von Hamamatsu).

4.7.3 Ergebnisse der Simulationen

Dieser Abschnitt zeigt mit "quaderatten" berechnete Intensitätsverläufe. Zur Demonstration der Leistungsfähigkeit des Programms werden zunächst unterschiedliche Probengeometrien gerechnet und die erhaltenen simulierten Intensitätsverläufe mit gemessenen verglichen. Anschließend zeigen Berechnungen den Einfluß von Detektorempfindlichkeit, Verspiegelung der Probenrückwand und Strahlungsschäden auf Intensitätsverläufe.

Vergleich von Simulationen mit Meßdaten

Es wurden sehr unterschiedliche Probengeometrien sowohl mit quaderatten berechnet, als auch am Fahrtisch vermessen, um im direkten Vergleich Simulation – Messung die Möglichkeiten des Programms zu testen. Alle Rechnungen bauen auf dem Basisdatensatz von Tabelle A.1 auf und verwenden dabei den "realen Detektor", also $I_{0,real}$. Als gemeinsame Parameter aller Simulationen (zum Vergleich mit dem Programmquelltext auf S. 139 ff in (Klammern) genannt) wurden verwendet:

- Probendicke (PROBENBR_VERT): 2 mm
- Reflektivität der Deckflächen Rdeck (REFL_DECK): 1,0
- Brechungsindex n_{PMMA} (N_BRECH): 1,5
- Intervall des Azimutwinkels φ (INT_LO_PHI bzw. INT_HI_PHI): $0 \leq \varphi \leq \pi/2$ in 50 Unterteilungen (N_PHI)
- Intervall des Polarwinkels ϑ (INT_LO_THETA bzw. INT_HI_THETA): $0 \le \vartheta \le \arcsin(1/n_{PMMA})$ in 50 Unterteilungen (N_THETA)
- Reflektivität der Ausleseseite $R_A(\vartheta)$ (REFL_ANF): Fresnelsche Reflexion nach Gl. 1.46

Tabelle 4.18 enthält die zwischen den fünf Simulationen variierenden Parameter Probenlänge (PROBENLG), Probenbreite (PROBENBR_HORI) und die Reflektivitäten von Rückwand (REFL_ENDE) und Seitenflächen (REFL_SEIT). Abbildung 4.18b zeigt die Ergebnisse der Simulation im Vergleich zu gemessenen Kurven an identischen Probengeometrien (Abb. 4.18a). Die folgende Liste gibt eine kurze Erläuterung zur Auswahl der unterschiedlichen Wellenlängenschiebertypen:

Tabelle 4.18: Aufstellung der variierenden Parameter für die Simulation von Abschwächkurven mit "quaderatten" für jeweils 2 mm dicke Proben. Alle Materialien basieren auf PMMA und sind mit 30ppm des Farbstoffs Y7 dotiert. Ein UV-Absorber unterdrückt Wellenlängen unterhalb 360 nm.

Probenbezeichnung		Probendir Länge (mm)	mensionen Breite (mm)	R _R	Rseit
0	WLS-Testprobe*	250	40	Fresnel ⁷	0,97
0	BPC-Prototyp ⁴	320	8	Fresnel/	0.95
3	BPC-Original ^e	320	8	0,89	0,97
۲	HAC-2 ^d	1090	200	Fresnel ^f	0.97
9	HAC-1 ^e	1729	200	Fresnel ¹	0,97

- Standardgeometrie, mit der zahlreiche Untersuchungen zur Strahlungsstabilität durchgeführt wurden.
- * Wellenlängenschieberstück, das in Voruntersuchungen zum Bau des ZEUS "Beampipe Calorimeter" (BPC) verwendet wurde (manuel) polierte Seitenflächen).
- Original BPC-Wellenlängenschieberstück mit aluminiumbedampfter Rückwand (maschinell polierte Seitenflächen höherer Qualität als
 *).
- ⁴ Original ZEUS Wellenlängenschieber für 2. hadronische Sektion
- * Original ZEUS Wellenlängenschieber für 1. hadronische Sektion.
- ¹ Fresnelsche Reflexion berechnet (mit Gl. 4.46).

100



Abbildung 4.18: Gemessene und simulierte Intensitätsverläufe für unterschiedliche Probengeometrien: ① WLS-Testprobe, ② BPC-Prototyp, ③ BPC-Original, ④ HAC-2, ⑤ HAC-1 (s. Tab. 4.18). Die Fluoreszenzintensitäten wurden willkürlich so skaliert, daß sich alle Kurven etwa beim Anregungsort 350 mm treffen.

- ① In dieser Geometrie werden WLS-Testproben (in einigen Fällen auch mit 200 mm statt 250 mm Länge) bei vielen Untersuchungen zur Strahlungsstablität verwendet. Die dabei gewonnenen Erkenntnisse müssen zum Zwecke praktischer Anwendungen meist auf größere Geometrien übertragen werden, bei ZEUS z.B. auf ④ und ⑤.
- ② Am Beispiel des ZEUS "Beampipe Calorimeter" (BPC) Prototyp-Wellenlängenschiebers ist zu erkennen, welch großen Einfluß die Seitenflächenqualität auf die Lichtabschwächung hat. Dies gilt in zunehmendem Maße bei Probengeometrien mit großem Verhältnis Probenlänge/Probenbreite.
- ③ In direkter Gegenüberstellung mit ② zeigt sich hier, welchen Erfolg bei der Lichtausbreitung eine Verbesserung der Oberflächeneigenschaften nach sich zieht. Diese im BPC verwendete Form eines Wellenlängenschiebers unterscheidet sich vom Prototypen durch verbesserte Seitenflächenpolitur und eine auf die Probenrückwand aufgedampfte Aluminiumschicht mit hoher Reflektivität (ca. 0,89% nach [Koh68]).
- Ein Wellenlängenschieber der 2. hadronischen Sektion des ZEUS-Kalorimeters ist hier ohne zusätzliche optische "Hilfsmittel" wie Aluminium-Rückwandreflektor (end reflector) oder Korrekturmuster (back reflector) dargestellt, um einen direkten Vergleich mit D zu ermöglichen. In der Rechnung wurde die spezielle Form des gesägten und gebogenen Endstückes des Wellenlängenschiebers (s. Abb. 5.9) nicht berücksichtigt.
- Für den Wellenlängenschieber der 1. hadronischen Sektion des ZEUS-Kalorimeters gilt ähnliches wie für
 Ø.

Im Vergleich der Meßdaten mit den Simulationswerten (Abb. 4.18a,b) fällt auf, daß eine sehr gute Übereinstimmung im Rahmen der Meßfehler (erkennbar an den Schwankungen der Meßkurven) erreicht wird. Bei der Berechnung der teilweise sehr unterschiedlichen Probentypen werden im Simulationsprogramm hauptsächlich Abmessungen verändert. In zwei Fällen (D und D) werden zudem die Rückwand- und Seitenflächenreflektivitäten den experimentellen Gegebenheiten angepaßt.

Auf dieser Basis ist es also möglich, ausgehend von einem Basisdatensatz die Intensitätsverläufe in sehr unterschiedlichen Probengeometrien zu errechnen. In weiterer Konsequenz können somit Strahlungsschäden, die experimentell bedingt an kleinen Probenstücken vermessen werden müssen, auf größere Geometrien übertragen werden.

Spektrale Detektorempfindlichkeit



Abbildung 4.19: Über alle Wellenlängen integrierter Intensitätsverlauf an Wellenlängenschieberproben mit idealem Detektor und XP2011 Photomultiplier. Kreissymbole: Mit Simulation "quaderatten" berechnet (gepunktete Kurve zur Führung des Betrachters), durchgezogene Kurve: Messung an WLS-Probe (250×40×2 mm³).

Die spektrale Empfindlichkeit des Detektors entscheidet neben der spektralen Absorption $\mu(\lambda)$ mit über den Verlauf der über alle Wellenlängen integrierten Intensitätskurve: Je größer die Empfindlichkeit des Detektors z.B. in Bereichen großer Abschwächung, desto stärker ist auch die Abschwächung des integrierten Gesamtsignals.

Ein solches Verhalten zeigt der bei Messungen verwendete Bialkali-Photmultiplier XP2011 der Firma Valvo gegenüber einem idealen Detektor mit wellenlängenunabhängig konstanter Ansprechwahrscheinlichkeit (Abb. 4.19). Am Beispiel einer typischen Wellenlängenschiebergeometrie¹⁰ ergibt die Simulation mit "quaderatten" einen steileren Intensitätsabfall für den Photomultiplier gegenüber einem idealen

Detektor. Bis auf die Fluoreszenzintensitätsverteilung im Basisdatensatz, die mit der jeweiligen spektralen Ansprechwahrscheinlichkeit gefaltet ist, verwenden beide Simulationen identische Parameter und Ausgangsdaten. Der Grund für den steileren Intensitätsabfall des Photomultipliers ist das Empfindlichkeitsmaximum des XP2011 bei etwa 450 nm (s. Abb. 4.14). In diesem Bereich ist die Absorption (s. Abb. 4.17) noch relativ groß, während sie zu größeren Wellenlängen hin monoton abnimmt. Hier fällt aber auch die Photomultiplierempfindlichkeit, so daß wellenlängenintegriert sich der steilere Abfall ergibt.

Endreflektoren

An das der Ausleseseite gegenüberliegende Wellenlängenschieberende kann zur Steigerung der Lichtausbeute und zur longitudinalen Homogenisierung des Signals ein Reflektor angebracht werden. Praktisch durchgeführt wurde eine solche Maßnahme z.B. an allen Wellenlängenschiebern im ZEUS-Kalorimeter. Ein Alumininiumblech dient hier als Endreflektor (s. Abb. 5.10). Den zu erwartenden Effekt auf das Signal durch einen Endreflektor zeigt der Vergleich zweier

102

¹⁰30 ppm Y7 in PMMA mit 360 nm UV-Absorber; 250 x 40 x 2 mm³

104



Abbildung 4.20: Über alle Wellenlängen integrierter Intensitätsverlauf an HAC1 Wellenlängenschieberproben mit XP2011 Photomultiplier bei offener bzw. aluminiumverspiegelter Probenrückwand. Kreissymbole: Rechnung mit Simulation "quaderatten", durchgezogene Kurven: Messungen an HAC1 Probe.

Simulationsrechnungen für ZEUS-HACI Wellenlängenschieber. Abbildung 4.20 stellt die Abschwächkurve eines Wellenlängenschiebers mit und eines ohne Endreflektor gegenüber. Deutlich zeigt sich der erheblich steilere Kurvenverlauf bei offenem Ende und eine bis zu doppelt so hohe Lichtausbeute bei Verwendung eines Endreflektors. In der Simulationsrechnung wurden lediglich die Endflächenreflektivität R_R von fresnelscher Reflexion für das offene Ende auf 89 % für den verspiegelten Abschluß geändert. Alle anderen Parameter waren gleich. Die spektrale Detektorempfindlichkeit in den Rechnungen entsprach der eines XP2011 Photomultipliers.

Zum Vergleich mit den berechneten Werten (Kreissymbole) zeigt Abbildung 4.20 auch die an realen Proben gemessenen Intensitätsverläufe als durchgezogene Kurven.

Übertragbarkeit von Strahlenschäden

Oftmals ist es aus experimentellen Gründen notwendig, Untersuchungen zur Strahlungsstabilität an anderen Probengeometrien vorzunehmen, als in wirklichen Detektorumgebungen vorkommen. So wurden z.B. Reihenuntersuchungen für ZEUS-Wellenlängenschiebermaterial an Testproben mit kompakten Abmessungen $(250 \times 40 \times 2 \text{ mm}^3)$ durchgeführt, um eine homogene Bestrahlung über die gesamte Materiallänge sicherzustellen. Aus solchen Testergebnissen müssen dann aber Folgerungen für bis zu 2m lange und 20 cm breite Wellenlängenschieber gezogen werden. Hinzu kommt, daß im speziellen Falle der ZEUS-Wellenlängenschieber Endreflektoren (s.o.) aus Aluminiumblech die Lichtausbeute erhöhen und den longitudinalen Intensitätsabfall verrringern. Auch auf solche Reflektoren mußte in den Untersuchungen an Testproben verzichtet werden. Um die Gültigkeit solcher Übertragungen zu belegen, sind mit Hilfe des Simulationsprogramms "quaderatten" entsprechende Rechnungen durchgeführt worden. KAPITEL 4. DURCHGEFÜHRTE UNTERSUCHUNGEN

Ein konkreter Vergleich zwischen einer Testprobe mit offenem Ende und einem HACI Wellenlängenschieber mit Aluminium-Endreflektor soll zeigen, wie dieselbe Materialschädigung sich auf die verschiedenen Geometrien auswirkt. Dabei wird von vier Basisdatensätzen ausgegangen. Ein Basisdatensatz repräsentiert die unbestrahlte Probe und entspricht dem in vorausgegangenen Betrachtungen bereits verwendeten Datensatz (Tabelle A.1) bei Verwendung der "realen" Detektorempfindlichkeit des XP2011. Hinzu kommen weitere Sätze von Basisdaten, die sich vom ersten in der Spalte des Absorptionskoeffizienten unterscheiden. Hier ist dem $\mu(\lambda)$ ein $\Delta\mu(\lambda)$ hinzuaddiert worden, was einer Strahlenschädigung entspricht. Diese Schädigungs-Basisdaten repräsentieren unterschiedlich starke Strahlenschäden in einem Dosisbereich von etwa 0,1 bis 10 kGy.

Die Werte entstammen — analog zur Bildung des Basisdatensatzes weiter oben — Messungen geschädigter Proben mit Spektralphotometer (für Wellenlängen unterhalb 502 nm) und geometriebefreiter Absorptionskoeffizienten aus Fahrtischmessungen mit Monochromator (für Wellenlängen oberhalb 500 nm). Von den Absorptionskoeffizienten verschiedener bestrahlter Proben wurden die Absorptionskoeffizienten der unbestrahlten subtrahiert, durch die verabreichte Strahlungsdosis dividiert und schließlich gemittelt. Das so erhaltene $\Delta \mu(\lambda)/Dosis wurde$ mit jeweils 0,1 bis 10 kGy multipliziert und dem unbestrahlten $\mu(\lambda)$ hinzuaddiert. Tabelle A.2 zeigt in Ergänzung zu Tabelle A.1 die Absorptionskoeffizienten der Basisdatensätze für bestrahlte Proben.

Ausgehend von den Basisdatensätzen werden nun acht integrale Abschwächkurven mit "quaderatten" erzeugt: Für beide Geometrien "WLS-Testprobe" und "HACI" (vergl. Tab. 4.18) jeweils "unbestrahlte" und mit 0,1,1 und 10 kGy "bestrahlte" Proben. Die "quaderatten"-Parameter unterscheiden sich in den Abmessungen der Proben und der Reflektivität der Probenrückwand R_R , die bei den WLS-Testproben als fresnelsche Reflexion berechnet wird und für die HAC1-Proben mit 89% angesetzt ist. Sonst liegen beiden Fällen dieselben Parameter zugrunde, die Seitenwandreflektivität wird wieder mit 97% angenommen. An die acht Kurven werden nun Exponentialfits gemäß Gleichung 3.7 gelegt (Fitbereiche HACI: 1000 mm -1729 mm, r=0,89; WLS: 110 mm - 250 mm, r=0,25) und so der Absorptionskoeffizient bestimmt. Tabelle 4.19 trägt die Werte zusammen und stellt die daraus resultierenden $\Delta \overline{\mu}$ gegenüber.

Tabelle 4.19: Vergleich der berechneten Differenzen von Absorptionskoeffizienten an WLS-Testproben und HACI nach simulierter "Bestrahlung" (permanenter Endschadenszustand). Die Absorptionskoeffizienten entstammen Exponentialfits gemäß Gl. 3.7 an integralen Intensitätsverläufen aus "quaderatten".

	WLS-Testprobe				HACI			
Dosis kGy	μ _s *) (10 ⁻² cm ⁻¹)	μ_{b}^{+} (10 ⁻² cm ⁻¹)	$\Delta \overline{\mu}_{WLS}^{(c)}$ (10 ⁻² cm ⁻¹)	$\mu_{*}^{(4)}$ (10 ⁻² cm ⁻¹)	μ ₆ ^{•)} (10 ⁻² cm ⁻¹)	Δµ _{HAC}) (10 ⁻³ cm ⁻¹)	$\frac{\Delta \overline{\mu}_{WLS}}{\Delta \overline{\mu}_{HACI}}$	
0,0	2,093	2,093	0,0	0.639	0.639	0.0		
0,1	2,093	2,100	0,007	0.639	0.644	0,005	1.40	
1,0	2,093	2,157	0,064	0,639	0.683	0.044	1 45	
10,0	2,093	2,714	0,621	0,639	1,071	0.432	1.44	

*) Absorptionskoeffizient der "unbestrahlten" Probe

*) Absorptionskoeffizient der "bestrahlten" Probe

e) Differenz der Absorptionskoeffizienten der bestrahlten und der unbestrahlten Proben

Als Ergebnis dieses Vergleichs läßt sich zusammenfassen, daß trotz der großen geometrischen Verschiedenheit beider Probenarten und trotz des Aluminium-Endreflektors im HAC1 die Differenzen der Werte $\Delta \mu$ wesentlich geringer als die der Absorptionskoeffizieuten μ sind. Dies zeigt, daß man auch mit relativ kleinen Proben zuverlässige Aussagen über Strahlenschäden erhalten kann. Die WLS-Testproben haben ein etwa um den Faktor 1,4 größeres $\Delta \mu$ als die HAC1. Zu erklären ist dieser Unterschied hauptsächlich mit den größeren Lichtwegen im HAC1: Dadurch werden kurzwellige Anteile des Fluoreszenzlichtes mit großen Absorptionskoeffizienten gegenüber der WLS-Testprobe abgeschwächt. Da der zusätzliche monochromatische Absorptionskoeffizient $\Delta \mu(\lambda)$ mit größerer Wellenlänge abnimmt, tritt ein solcher Strahlenschaden bei den kurzen WLS-Testproben stärker in Erscheinung. Dieser Effekt ist für Testuntersuchungen durchaus wünschenswert, da er die Nachweisempfindlichkeit steigert und bei direkter Übertragung der Schadenswerte auf größere Geometrien den Schaden überschätzt, was einen Sicherheitsgewinn in der Aussage bedeutet.

Weitere Anwendungen von "quaderatten"

Ähnliche Aussagen, wie sie zuvor für Wellenlängenschiebermaterial gewonnen wurden, lassen sich auch für den Szintillator SCSN-38 ableiten. Die Basisdatensätze des "bestrahlten" und unbestrahlten Szintillators finden sich in den Tabellen A.3 und A.4. Abbildung 4.21 vergleicht Simulationsrechnungen für den bestrahlten und unbestrahlten Fall an SCSN-38 Platten (200 x 40 x 2,6 mm³) mit Messungen am Fahrtisch. Weitere Anwendungen finden sich im Kapitel 5.



Abbildung 4.21: Über alle Wellenlängen integrierter Intensitätsverlauf an SCSN-38 (200 x 40 x 2,6 mm³) mit XP2011 Photomultiplier. Kreissymbole: Rechnung mit Simulation "quaderatten"; offen: unbestrahlt, gefüllt: "bestrahlt" mit 20 kGy. Durchgezogene Kurven: Messungen an unbestrahlter bzw. mit 21,2 kGy bestrahlter Probe.

Interpretation der Resultate für ZEUS

Die in den vorausgegangenen Kapiteln gewonnenen Erkenntnisse zur Strahlungsstabilität verschiedener Kunststoffe unter unterschiedlichen Bedingungen sollen in diesem Kapitel auf das ZEUS-Kalorimeter angewendet und diskutiert werden.

Es wird dabei gezeigt, wie sich die Schädigungen der Materialien durch einen Strahlungsuntergrund auf die Signalauslese und damit letztlich auf die Eigenschaften des Kalorimeters auswirken. Im Rahmen des für ZEUS zu erwartenden Strahlungsuntergrunds soll am Ende des Kapitels dann die resultierende Schadenshöhe im Kalorimeter bewertet und in Beziehung zu den Leistungsanforderungen an das Gerät interpretiert werden.

Das Kapitel beginnt mit einer knappen Darstellung des Aufbaus des ZEUS-Detektors und dessen prinzipieller Funktionsweise. Ein ausführlicherer Abschnitt widmet sich der Signalerzeugung und -auslese im Kalorimeter, um als Grundlage für die anschließende Übertragung der Bestrahlungsergebnisse auf das Kalorimeter zu dienen.

Zum Aufbau des ZEUS-Detektors 5.1

5.1.1 Gesamtüberblick

Abbildung 5.1 zeigt schematisch den Aufbau der zentralen ZEUS-Komponenten. Das HERA-Strahlrohr läuft durch den Detektor mit Protonenflugrichtung im Bild von rechts nach links. (In Protonenflugrichtung gelegene Komponenten werden oft mit "F" vor der Komponentenbezeichnung für engl. "forward" abgekürzt. "R" dient als Kennzeichen der Komponenten des rückwärtigen Bereichs in Elektronenflugrichtung, "B" kennzeichnet den zentralen Detektorbereich. Beispiel: "FCAL" für "Forward Calorimeter".)

Zum Nachweis geladener Teilchen dient ein System von Spurkammern innerhalb des supraleitenden SOLENOIDEN (COIL). Mit einer Feldstärke von 1,43 T zwingt dieser die geladenen Teilchen zur Impulsmessung auf kreisförmige Bahnen. Eine KOMPENSATIONSSPULE (COMPEN-SATOR) verhindert den Einfluß dieses Magnetfeldes auf den HERA-Teilchenstrahl. Das System innerer Spurkammern wird aus dem VERTEX-DETEKTOR (VXD), den SPURENKAMMERN (FTD, CTD, RTD) und dem ÜBERGANGSSTRAHLUNGSDETEKTOR (TRD) gebildet.

Zur Gewährleistung der Supraleitung in den Spulen versorgt das KÜHLSYSTEM die erforderlichen Teile mit Helium der Temperatur 4,5 K bei ca. 1000 hPa Druck. Das Helium wird vom HERA-Kühlkreislauf übernommen, dessen 5K kaltes Helium mit ca. 4000 hPa von einer Versorgungsbox (KRYO) aufbereitet wird.

SURIES

Der innere Bereich ist umgeben vom URAN-SZINTILLATOR-KALORIMETER (FCAL, BCAL,

RCAL), welches ausführlicher im anschließenden Abschnitt behandelt wird.



Alle bisher aufgezählten Komponenten werden eingeschlossen vom EISENJOCH (YOKE) mit einer Masse von ca. 2000 t. Es dient der mechanischen Stabiltät des Detektors, der Rückführung des magnetischen Flusses der Hauptspule und nimmt das "BACKING"-KALORIMETER (BAC) auf. Angebaute Kupferspulen erzeugen zur Identifikation und Impulsmessung von Myonen ein Magnetfeld von 1,6 T im Innern. Das BAC dient der Energiemessung nicht vollständig im Uran-Szintillator-Kalorimeter absorbierter Teilchen. Weiterhin unterstützt es die Myonendetektoren beim Nachweis von Myonen. Als aktive Schichten zwischen den Stahlplatten des Eisenjochs werden Aluminium-Proportionalkammern mit einer Ar-CO2 - Füllung benutzt.

Außerhalb des Eisenjochs messen großflächige RÜCKWÄRTS- UND "BARREL"-MYONENDETEKTOREN (BMUON, RMUON) Ort und Richtung von Myonen. Sie bestehen aus sogenannten "Limited Streamer Tubes", die die geforderte Ortsgenauigkeit von etwa 1 mm gewährleisten. Ein als "VETOWALL" bezeichnetes Nachweisgerät ermöglicht die Erkennung oberhalb des Detektors durch den Protonenstrahl erzeugter Teilchen.

Aus kinematischen Gründen ist der genaue Nachweis von Myonen in Protonenflugrichtung innerhalb kleinster Winkelbereiche bezüglich der Strahlachse sehr wichtig. Dieses leisten die VORWÄRTS-MYONENDETEKTOREN (FMUON-TOROIDS), ein System aus mittels Kupferspulen magnetisierten Eisentoroiden, die mit verschiedenen Detektoren (Driftkammern, "Limited Streamer Tubes") bestückt sind.



5.1.2 Das Kalorimeter

Das hochauflösende Uran-Szintillator-Kalorimeter des ZEUS-Detektors ist mechanisch in drei Komponenten,

• das VORWÄRTSKALORIMETER (FCAL),

• das "BARREL"-KALORIMETER (BCAL)

• und das RÜCKWÄRTSKALORIMETER (RCAL)

unterteilt.

Insgesamt umschließt das gesamte Kalorimeter einen Polarwinkelbereich θ von 2,6° bis 176,1° und deckt damit 99,7% des gesamten Raumwinkels ab.

Aufgrund der unterschiedlichen Teilchenenergien bei den Kollisionen in HERA ist das Kalorimeter unsymmetrisch aufgebaut. Das in Protonenflugrichtung gelegene FCAL ist aus diesem Grunde longitudinal fast von doppelter Dicke im Vergleich zum RCAL und weist außerdem eine feinere Segmentierung auf.

Das Kalorimeter setzt sich aus insgesamt 80 sogenannten Modulen zusammen, die in "Sandwich"-Bauweise gefertigt sind. Jedes Modul besteht aus bis zu 185 Lagen Absorber- und aktiver Szintillatorschicht. Als Absorberplatten finden in Stahlfolie eingeschweißte Platten abgereicherten Urans (DU) Verwendung. Sie wechseln sich mit den aktiven Nachweisschichten aus dem Szintillatormaterial SCSN-38 ab. Das Szintillationslicht wird über Wellenlängenschieber, die an den Modulseiten angebracht sind, mit Photomultiplierröhren ausgelesen (Genaueres zur optischen Auslese im folgenden Unterabschnitt).

Das Kalorimeter ist aufgrund der aufeinander abgestimmten Dicken von Absorber- (3,3 mm)und Szintillatorplatten (2,6 mm) kompensierend, d.h. das Verhältnis der Signalantworten für Elektronen und Hadronen gleichen Impulses ist gleich eins $(e/h = 1 \pm 0,05)$. Mit Hilfe des durch die Radioaktivität der Uranplatten hervorgerufenen Signals ("Uranrauschen", UNO) ist eine hochpräzise Abstimmung der Signalhöhen aller Photomultiplierröhren möglich. Die Genauigkeit der absolut gemessenen Energie beträgt 1 %.

Die erreichte Energieauflösung des Kalorimeters ist

- für Elektronen: $\sigma(E)/E = 18\%/\sqrt{E} \oplus 1\%$,
- für Hadronen: $\sigma(E)/E = 35 \%/\sqrt{E} \oplus 2\%$.
- (E in GeV, ⊕ steht für quadratische Addition.)

Optische Auslese

Das Kalorimeter ist longitudinal in FCAL und BCAL (RCAL) in drei (zwei) Sektionen unterteilt, die separat ausgelesen werden können. Dem Wechselwirkungspunkt am nächsten liegt die elektromagnetische Sektion "EMC", gefolgt von zwei (einer) hadronischen Sektionen "HAC1" und "HAC2". Die Szintillatoren im EMC-Bereich haben eine Frontfläche von $5 \times 20 \text{ cm}^2$ ($10 \times 20 \text{ cm}^2$), die der HAC-Sektionen eine Größe von $20 \times 20 \text{ cm}^2$. Damit werden Kalorimetertiefen von insgesamt 4 bis 7 Absorptionslängen erreicht. Abbildung 5.2 zeigt diesen Aufbau schematisch am Beispiel von FCAL-Sektionen.

In das Kalorimeter einfallende Teilchen werden durch die Absorberschichten in elektromagnetische bzw. hadronische Teilchenschauer gewandelt. Beim Durchqueren der Szintillatorschichten setzen die Schauerteilchen Szintillationslicht frei. Der Szintillator SCSN-38 (von KU-RARAY Co., Ltd., Tokyo, Japan) besteht aus dem Basismaterial Polystsyrol (PS), in das zwei



Farbstoffe eingebettet sind. Der erste Farbstoff, butyl-PBD, ist in recht hoher Konzentration von 1% im Basismaterial gelöst und hat die Aufgabe, das UV-Licht (um 300 nm) der szintillierenden PS-Matrix in den Nah-UV-Bereich (um 360 nm) zu verschieben. Diese Emission fällt genau in den Absorptionsbereich des zweiten Farbstoffs, BDB, der in 0,02%-iger Konzentration gelöst vorliegt. BDB emittiert blaues Licht (um 430 nm), das sich durch den Szintillator bis zu dessen seitlichen Kanten hin ausbreitet. Hier wird es vom Wellenlängenschieber aufgenommen. Die spektralen Absorptionen und Emissionen der beteiligten Farbstoffe in Szintillator und Wellenlängenschieber zeigt Abbildung (kommt in Kap. 2).

Jede Kalorimetersektion wird separat mit jeweils zwei Wellenlängenschiebern an den Seiten über Photomultiplier ausgelesen. Das Summensignal beider Seiten einer Sektion stellt das eigentliche Energiemaß des zu vermessenden Teilchenschauers dar. Dabei ist es erwünscht, ortsunabhängig ein konstantes Energiesignal zu messen: In der Mitte eines Kalorimetermodules einschlagende Teilchen sollen dieselbe Signalhöhe produzieren, wie sie am Rande hervorgerufen wird.

Testmessungen [Zeu93] haben gezeigt, daß Nichtuniformitäten von bis zu $\pm 7\%$ auftreten, wenn keine Korrekturen vorgenommen werden. Ein Grund hierfür sind die über das Emissionsspektrum des Fluoreszenzfarbstoffs BDB stark veränderlichen monochromatischen Abschwächlängen. Zwar liegt die Abschwächlänge für 430 nm bei etwa 1 m, sie geht aber zum kurzwelligen Rand des Emissionsspektrums stark zurück: Bei 390 nm beträgt sie nur noch ca. 1 mm. Die Folge hiervon ist ein zu den Randbereichen (ab etwa 5 cm von der Auslesekante) der Szintillatoren hin stark überexponentieller Signalanstieg (vgl. Abbildung 5.4). Hinzu kommen geometrische Effekte (z.B. an den großen Front- und Rückflächen austretende Lichtanteile), die ebenfalls in Randnähe eine Signalüberhöhung zur Folge haben.

Abhilfe schafft ein Reflektorumschlag aus Tyvek (Q137D von DuPont). Das weiße, papierähnliche Kunststoffmaterial zeigt eine gute UV-Reflektivität und ist strahlungsstabil. Es





Abbildung 5.3: Zeichnung des Korrekturmusters der EMC-Szintillatoren

wurde mit einem schwarzen Muster zur Korrektur der Signalüberhöhungen bedruckt (s. Abbildung 5.3). Jede Szintillatorplatte ist bis auf die Auslesekanten vollständig in ein solches Korrekturpapier eingeschlagen, so daß die Nichtuniformitäten auf $\pm 2\%$ für EMC- und $\pm 4\%$ für die großflächigeren HAC-Bereiche reduziert werden konnten. Das Reflektormuster wurde dabei für alle EMC- bzw. HAC-Sektionen jeweils gleich gewählt.

Nach Verlassen des Szintillators wird das blaue Licht vom Wellenlängenschieber (WLS) aufgenommen. Dessen eigentlich aktiver, lichtauslesender Teil und der allein zum Lichttransport verwendete Teil bilden eine Einheit, um Intensitätsverluste an den sonst notwendigen Übergangsstellen zu vermeiden. Deshalb wird von beiden Teilen als dem Wellenlängenschieber gesprochen. Dieser besteht aus 2 mm dicken Platten des Basismaterials Polymethylmethacrylat (PMMA), das mit 45 ppm (30 ppm) des Farbstoffs Y7 in den EMC-Sektionen (HAC-Sektionen) dotiert ist (gefertigt von KURARAY Co., Ltd., Tokyo, Japan). Weiterhin schützt ein UV-Absorber, der unterhalb 360 nm kurzwelligere Lichtanteile abschneidet, die Matrix vor schädigenden Einflüssen dieses Lichts und unterdrückt unerwünschtes Čerenkovlicht, das direkt durch den Wellenlängenschieber fliegende Teilchen erzeugen.

Das Szintillatorlicht wird von Y7 in grünes Licht (um 510 nm) gewandelt und in den Wellenlängenschiebern zu Photomultipliern (Valvo XP1911 für FCAL-EMC, Hamamatsu R580 sonst) geführt. Wie bei den Szintillatoren wird auch hier eine uniforme Lichtauslese angestrebt: Unabhängig von der jeweiligen Szintillator wird auch nier Sektion soll, gleiche Lichtmenge vorausgesetzt, das Licht aus jedem Szintillator auch nach Durchquerung des Wellenlängenschiebers im Photomultiplier ortsunabhängig die gleiche Signalhöhe erzeugen. Dies ist wichtig, um eine Energiemessung unabhängig von Schauerschwerpunkten und -verteilung zu ermöglichen. Dazu ist der lichtauslesende Bereich des Wellenlängenschiebers mit einem Reflektor (Rückreflektor oder Backreflektor) hinterlegt. Dieser ist aus einem reflektierenden Material (z.B. Dynamark von der 3M-Corporation im FCAL) gefertigt, das zunächst die Lichtausbeute erhöht, dann aber ortsabhängig unterschiedlich geschwärzt ist. Jeder Wellenlängenschieber verfügt über ein individuelles Muster, das nach automatisierten Messungen durch ortsabhängige Fluoreszenzanregung mit einer beweglichen Xenon-Lampe gewonnen wurde [Zeu93]. Die anfangs knapp 30%-ige Inhomogenität konnte durch die individuellen Rückreflektoren und die anschließend beschriebenen Endreflektoren auf etwa $\pm 2\%$ reduziert werden (Zahlen gelten für FCAL).

Neben der Uniformität spielt auch die Lichtausbeute eine wichtige Rolle. Erwünscht sind mindestens etwa 100 Photoelektronen pro GeV und pro Photomultiplier. Dafür sorgen neben den erwähnten Rückreflektoren sogenannte Endreflektoren aus Aluminiumfolie (bzw. mit Aluminium bedampfter Mylar-Folie). Sie decken die Wellenlängenschieberkante gegenüber den auslesenden Photomultipliern ab und leiten sonst verlorenes Licht an die Photomultiplier zurück.

Alle Wellenlängenschieber einer Seite sind gemeinsam in einer Stahlkassette aus 0.2 mm

starkem Stahl gehalten. Mit Schaumstoffstückchen werden sie gegen die Szintillatoren gepreßt, aber durch 0,4 mm dicke, vor den Wellenlängenschiebern gespannten Nylonschnüren an direktem Kontakt gehindert.

5.2 Auswirkungen von Materialschäden auf das Kalorimeter

In der Diskussion um Einflüsse von Materialschäden auf das Verhalten des ZEUS-Kalorimeters stehen optische Materialveränderungen durch Strahlungseinwirkung im Vordergrund. Dabei lassen sich grundsätzlich zwei Schädigungsarten nennen:

- Zerstörung vorhandener optischer Wirkstoffe in den Materialien, wie UV-Absorber und Farbstoffe und
- Erzeugung zusätzlicher, vor der Bestrahlung nicht vorhandener Substanzen, die den vorgesehenen Funktionsablauf im Material stören. Das sind z.B. passive Absorptionszentren, die einen Teil des anregenden Lichtes für die Fluoreszenzfarbstoffe aufnehmen, aber selbst nicht in der gewünschten Form emittieren oder den Lichttransport des Fluoreszenzlichtes stören.

Beide Schädigungsarten nehmen auf unterschiedliche Weise Einfluß auf die Funktionsweise der Kalorimeterkomponenten. Sie reduzieren z.B. die Lichtausbeute und betreffen damit die Energieauflösung oder bewirken eine Veränderung in der Abstimmung der Auslesehomogenität. Bei allen Abschätzungen der Auswirkungen wird im folgenden stets angenommen, daß sich die verabreichte Strahlungsdosis homogen über das untersuchte Probenmaterial ausgebreitet hat. Weiterhin wird davon ausgegangen, daß alle Bestrahlungen in Luft stattfinden und daß aufgrund der geringen Dosisleistung im ZEUS-Detektor die permanenten Endschäden angegeben werden können. Eine Abhängigkeit der Endschadenshöhe von der Dosisleistung wurde in einem Dosisleistungsbereich von etwa 3 Gy/h bis 3 kGy/h nicht beobachtet. Es wird angenommen, daß dies auch für ZEUS ($\dot{D} \approx 0.04 \, \text{Gy/h}$) richtig ist. Als zu erwartende Gesamtdosis in 10 Jahren Betriebszeit werden für das ZEUS-Kalorimeter 3 kGy abgeschätzt (damit $\dot{D} \approx 0.04 \, \text{Gy/h}$) und in den Rechnungen verwendet. Dieser Wert liegt deutlich über stichprobenartigen Messungen an der Rückseite von Vorwärts- und Rückwärtskalorimeters in Strahlrohrnähe. Diese (Pra96] hatten innerhalb eines Betriebsjahres Gesamtdosen von weniger als 5 Gy ($\approx 0.6 \, \text{mGy/h}$) im Normalbetrieb geliefert.

Sofern im folgenden ortsabhängige Daten präsentiert werden, sei darauf hingewiesen, daß alle Aussagen nicht die Schauerverteilung realer Ereignisse im Kalorimeter berücksichtigen. Um für bestimmte Teilchensorten und -energien quantitative Aussagen machen zu können, müßte eine Faltung der hier dargestellten Ergebnisse mit der jeweiligen Schauerverteilung durchgeführt werden.

Die in den vorangegangenen Kapiteln gefundenen Effekte der Strahlung auf die in ZEUS verwendeten Stoffe werden nun im Rahmen der ZEUS-Kalorimeterumgebung für jede optische Komponente diskutiert und ihre Auswirkung auf das Kalorimeter bzw. zulässige Strahlungsdosen ohne nennenswerte Auswirkungen genannt. Zwei separate Abschnitte befassen sich zunächst getrennt mit Szintillator und Wellenlängenschieber, bevor dann die gemeinsam hervorgerufenen Effekte zusammengefaßt werden.

5.2.1 Szintillator

Wie die Untersuchungen des Materials SCSN-38 gezeigt haben (s. Abschnitt 4.3), treten bei Bestrahlung zwei wesentliche Effekte auf.

1) Zerstörung der Fluoreszenzfarbstoffe bzw. Bildung von Absorptionszentren, die anregendes Licht absorbieren, mit der Folge verminderter Lichtausbeute: Das Verhältnis der Fluoreszenzlichtintensitäten nach $(I_{fl,k})$ und vor $(I_{fl,w})$ Bestrahlung lautet bei etwa 2,6 mm dicken Materialstücken in Abhängigkeit von der Dosis (D) (Gl. 4.41):

$$\left(\frac{I_{fl,b}}{I_{fl,b}}\right)_{SCI}(D) = 1 - (9 \pm 2) \cdot 10^{-6} \text{ Gy}^{-1} \cdot D.$$
 (5.1)

2) Bildung zusätzlicher passiver Absorptionszentren, die die Lichtausbreitung hemmen: Die Änderung des effektiven, über alle Emissionswellenlängen gemittelten exponentiellen Absorptionskoeffizienten ($\Delta \overline{\mu}$) mit der Dosis (Erreichen des Endschadens angenommen) (D) lautet (Gl. 4.29):

$$\Delta \overline{\mu}_{SCI}(D) = (0, 8 \pm 0, 2) \cdot 10^{-6} \text{Gy}^{-1} \text{cm}^{-1} \cdot D.$$
 (5.2)

Diese Effekte haben drei wesentliche Auswirkungen auf die Kalorimeterauslese:

- a) Beide Effekte führen zu verminderter Lichtabgabe des Szintillators, was letztlich die Zahl freigesetzter Photoelektronen/GeV am Photomultiplier und damit die Energieauflösung des Kalorimeters betrifft.
- b) Effekt 2) ist von Bedeutung f
 ür die Uniformit
 ät der Signalausbeute: Ein ver
 ändertes Abschw
 ächverhalten nach einer Bestrahlung pa
 ßt bei entsprechender Dosis m
 öglicherweise nicht mehr zu den Korrekturmustern auf dem Tyvek-Papier. Eine dadurch hervorgerufene Ortsabh
 ängigkeit der Signalausbeute w
 äre die Folge.
- c) Auch die Ortsbestimmung im Kalorimeter, die durch Verhältnisbildung der Intensitäten des rechten und linken Auslesekanals möglich wird, kann sich bei entsprechend hoher Dosis wegen 2) verändern, eine Einbuße in der Ortsauflösung bzw. Änderungen in der Ortsberechnung wäre die mögliche Konsequenz.

Zu a): Die Lichtausbeute

Die dem Wellenlängenschieber an der Szintillatorauslesekante angebotene Lichtintensität I(x)hängt von der Anfangsintensität (s. 1)) und dem Abschwächverhalten in der Probe ab. Ausgehend von Gleichung 3.7 gilt bei Berücksichtigung der Intensitätskorrektur durch das Reflexionsmuster K(x) für die gemessene Lichtintensität an der Auslesekante:

$$I_{korr}(x) = I_0 \cdot K(x) \cdot \left(e^{-\overline{\mu} \cdot x} + R \cdot e^{-\overline{\mu} \cdot (2L-x)} \right).$$
(5.3)

Das Verhältnis $V_{SCI}(x)$ der Lichtintensitäten der bestrahlten $(I_b(x))$ und der unbestrahlten $(I_u(x))$ Szintillatoren lautet dann

$$V_{\rm SC1}(x) = \frac{I_{0,b} \cdot \left(e^{-(\bar{\mu} + \Delta \bar{\mu}) \cdot x} + R \cdot e^{-(\bar{\mu} + \Delta \bar{\mu}) \cdot (2L - x)}\right)}{I_{0,u} \cdot \left(e^{-\bar{\mu} \cdot x} + R \cdot e^{-\bar{\mu} \cdot (2L - x)}\right)}.$$
(5.4)



Abbildung 5.4: Mit dem Simulationsprogramm "quaderatten" errechnete ortsabhängige Signalantworten eines Szintillators in einer Kalorimetersektion ohne und bei der Summenintensität einmal mit idealisiertem Korrekturmusteraufdruck. Erläuterungen siehe Text.

Hieraus läßt sich ableiten

$$V_{\rm SCI}(x) = \frac{I_{0,b}}{I_{0,\mu}} \cdot e^{-\Delta \overline{\mu} \cdot x} \cdot \frac{1 + R \cdot e^{-2(\overline{\mu} + \Delta \overline{\mu}) \cdot (L-x)}}{1 + R \cdot e^{-2\overline{\mu} \cdot (L-x)}}.$$
(5.5)

Zum Vergleich der mittleren Intensitäten vor und nach Bestrahlung sei ein mittlerer Lichtweg von x = 10 cm in den etwa L = 20 cm langen Proben angenommen. Mit dem Verhältnis der Fluoreszenzintensitäten aus Gleichung 5.1 und der Abhängigkeit der zusätzlichen Absorption von der verabreichten Strahlungsdosis aus Gleichung 5.2 ergibt sich für die Dosisabhängigkeit der relativen Lichtausbeute an der Auslesekante nach Bestrahlung (R=0,15, Gl. 3.10) bei einer angenommenen Gesamtdosis im ZEUS-Kalorimeter von 3 kGy

$$V_{\rm SCI}(D=3\,{\rm kGy}) = 0,95\pm0,02,$$
 (5.6)

Dieser Wert ist geringfügig anders als der durch das Simulationsprogramm "quaderatten" (s Abschnitt 4.7) ermittelte von 0,957.

Im Mittel wäre die Lichtabgabe der Szintillatoren also auf (95 ± 2) % der Anfangslichtausbeute verringert.



Abbildung 5.5: Durch Bestrahlung hervorgerufene Nichtuniformität der Szintillatorlichtauslese in einer Kalorimetersektion. Nach Berechnungen mit dem Simulationsprogramm "quaderatten".

Zu b): Die Uniformität

Um Aussagen über die Uniformität der Szintillatorlichtauslese vor und nach Bestrahlung treffen zu können, muß zunächst der ortsabhängige Intensitätsverlauf im Szintillator bekannt sein. Insbesondere die Lichtabgabe bei Anregung in randnahen Bereichen des Szintillators sollte möglichst genau ermittelt werden. Hier bereiten überexponentielle Anstiege im über alle Wellenlängen summierten Gesamtsignal aufgrund kurzwelliger und kurzreichweitiger Spektralanteile bei einer theoretischen Abschätzung Schwierigkeiten.

Abhilfe schafft die Lichtwegesimulation des Programms "quaderatten", die bereits in Abschnitt 4.7 erfolgeich zur Berechnung von Intensitätsverläufen am Beispiel von Wellenlängenschiebern eingesetzt wurde. Das Simulationsprogramm kann für Szintillatoren unverändert übernommen werden, lediglich Probengeometrie, Brechungsindex und Basisdatensatz mit neuem Emissionspektrum und zugehörigen Absorptionskoeffizienten müssen angepaßt werden. Da in diesem Kapitel die konkreten Belange des ZEUS-Detektors diskutiert werden, fießt zudem in das Emissionsspektrum des Basisdatensatzes die spektrale Empfindlichkeit des Wellenlängenschieberfarbstoffs Y7 mit ein (vgl. S. 94). Ausgehend von Gleichung 4.56 kann dann auch die Signalantwort des Szintillators berechnet werden. Soll außerdem das Korrekturmuster, das zur Homogenisierung des ausgelesenen Summensignals beider Seiten auf den Reflektorumschlag gedruckt ist, berücksichtigt werden, so kann dies mittels Multiplikation eines wellenlängenunabhängigen Faktors K(x) geschehen. Das so korrigierte Signal schreibt sich aufbauend auf Gleichung 4.56 dann als:

$$I_{korr}(x) = K(x) \cdot \overline{I}(x)$$
(5.7)

 Tabelle 5.1: Tabelle der ortsabhängigen Nichtuniformitäten der Szintillatorauslese bei verschiedenen Strahlungsdosen (vgl. Abbildung 5.5) nach Berechnungen mit dem Simulationsprogramm "quaderatten".

						_		
Ort		Nicht	uniform	itäten b	ei Dosis	(kGy)		
(mm)	1	3	6	10	20	50	100	
0,0	1,005	1,016	1,034	1,060	1,135	1,455	2,352	
5,0	1,004	1,011	1,023	1,042	1,097	1,348	2,087	
10,0	1,003	1,009	1,019	1,034	1,081	1,291	1,900	
15,0	1,002	1,008	1,016	1,029	1,069	1,248	1.759	
20,0	1,002	1,006	1,014	1,025	1,059	1,213	1.643	
25,0	1,002	1,005	1,012	1,021	1,050	1,183	1,545	
30,0	1,001	1,005	1,010	1,018	1,043	1,156	1.461	
35,0	1,001	1,004	1,008	1,015	1,037	1,132	1,388	
40,0	1,001	1,003	1,007	1,013	1,031	1.111	1.323	
45,0	1,001	1,003	1,006	1,011	1,026	1,092	1.266	
50,0	1,001	1,002	1,005	1,009	1,021	1,075	1,216	
55,0	1,001	1,002	1,004	1,007	1,017	1,061	1.173	
60,0	1,000	1,001	1,003	1,006	1,013	1,047	1.135	
65,0	1,000	1,001	1,002	1,004	1,010	1,036	1.102	
70,0	1,000	1,001	1,002	1,003	1,007	1,026	1.074	
75,0	1,000	1,001	1,001	1,002	1,005	1,018	1.051	
80,0	1,000	1,000	1,001	1,001	1,003	1,012	1.032	
85,0	1,000	1,000	1,000	1,001	1,002	1,007	1.018	
90,0	1,000	1,000	1,000	1,000	1,001	1,003	1,008	
95,0	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,001	1.002	
100,0	1,000	1,000	1,000	1,000	1.000	1.000	1 000	

Das Ergebnis der Simulation zeigt Abbildung 5.4. Die Signalantwort bei ortsabhängiger Anregung ist in der Abbildung für den linken, den rechten und die Summe beider Auslesekanäle ohne Korrekturmuster angegeben. Die horizontale Gerade beschreibt den Verlauf nach Aufdruck eines idealen Korrekturmusters auf das Tyvekpapier, das die Szintillatoren umgibt.

Weil die in der Abbildung gezeigte Signalantworten nur unter den in Abschnitt 4.7 gemachten Voraussetzungen gelten, fehlen einige Aspekte im Hinblick auf die reale Detektorumgebung. So bleiben in den hier durchgeführten Rechnungen Abweichungen von der Quaderform ("Keilförmigkeit") der Szintillatoren ebenso unberücksichtigt, wie Streuung, Selbstabsorption mit anschließender Reemission u.ä. Auch werden Einflüsse benachbarter Einheiten – wie der auslesenden Wellenlängenschieber – nicht berücksichtigt. Nah am Szintillatorrand führen z.B. bei einer praktischen Messung die Bildung von Čerenkovlicht im Wellenlängenschieber durch dort eindringende Teilchen oder geometrische Randeffekte (Licht tritt zwischen Relektorumschlag und Probenoberfläche aus) zu weiterer Signalüberhöhung.

Trotzdem ist der gewählte Weg zur Beschreibung der optischen Auswirkungen einer Bestrahlung im Szintillator geeignet, da in erster Näherung die angedeuteten Umgebungseffekte nicht von der Szintillatorbestrahlung betroffen sind.

Eine gute Bestätigung der Qualität der Simulationsdaten liefern Vergleiche von Monte-Carlo-Simulationen mit am Kalorimeterturm gemessenen Daten [Neu96]. Hier wurde mit einer ⁶⁰Co-Strahlungsquelle am Rande einer Kalorimetersektion Szintillationslicht erzeugt, wobei der Schwerpunkt der Szintillation nur etwa 10 mm von der Szintillatorauslesekante entfernt liegt. Rechts- Links-Verhältnisse der Signalhöhen (vgl. Abbildung 5.6 und Tabelle 5.2) liefern im praktischen Experiment die gleichen Ergebnisse wie Monte-Carlo-Rechnungen, die auf die in Abbildung 5.4 gezeigten Intensitätsverläufe zurückgreifen.

Bei Bestrahlung des Szintillators ändern sich dessen

- 1) Fluoreszenzlichtausbeute und
- 2) spektrale Absorption.



Abbildung 5.6: Ortsposition des senkrecht einfallenden anregenden Teilchens gegen das Rechts/Links – Verhältnis in einer Kalorimetersektion bei unterschiedlichen Strahlungsdosen. Die Koordinate "0" bezeichnet den linken Szintillatorrand, "100" die Szintillatormitte. Nach Berechnungen mit dem Simulationsprogramm "quaderatten".

Die Änderung von 1) ist im vorausgegangenen Abschnitt nachzulesen. Die Änderung von 2) verschlechtert die Abstimmung des Korrekturmusters, das Summensignal wird ortsabhängig. Die Stärke dieser Nichtuniformität läßt sich mit dem Simulationsprogramm "quaderatten" berechnen: Bei identischen Probengeometrien und Simulationsparametern werden lediglich die Basisdatensätze für bestrahlte und unbestrahlte Proben verändert, um so Abschwächkurven

Tabelle 5.2: Tabelle der Quotienten der Lichtausbeute der rechten und der linken Szintillatorseite (links = 0 mm, rechts = 200 mm) bei verschiedenen Strahlungsdosen (vgl. Abbildung 5.6) nach Berechnungen mit dem Simulationsprogramm "quaderatten".

Ort	Rechts- Links-Verhältnis bei Dosis (kGy)								
(mm)	0	1	3	6	10	20	50	100	
0,0	0,501	0,489	0,467	0,437	0,399	0,318	0,166	0,061	
5,0	0,648	0,634	0,607	0,570	0,523	0,422	0,227	0,087	
10,0	0,689	0,676	0,649	0.611	0.564	0,461	0,257	0,104	
15,0	0, 718	0,705	0,678	0,641	0,594	0,492	0,284	0,122	
20,0	0,741	0,728	0,703	0,667	0,621	0,520	0,311	0,141	
25,0	0,762	0,749	0,725	0,690	0,645	0,547	0,338	0,161	
30,0	0,780	0,768	0,745	0,711	0,669	0,573	0,366	0,184	
35,0	0,798	0,786	0,764	0,732	0,692	0,599	0,395	0,209	
40,0	0,814	0,804	0,783	0,753	0.714	0,626	0,426	0,237	
45,0	0,831	0,821	0,801	0,773	0,736	0,653	0,459	0,268	
50,0	0,847	0,837	0,819	0,793	0,759	0,680	0,494	0,303	
55,0	0,862	0,854	0,837	0,813	0,781	0,708	0,531	0,342	
60,0	0,878	0,870	0,855	0,833	0,804	0,7 3 7	0,570	0,386	
65,0	0,893	0,886	0,873	0,853	0,827	0,766	0,612	0,436	
70,0	0,908	0,902	0,890	0,873	0,850	0,796	0,657	0,491	
75,0	0,923	0,918	0,908	0,893	0,874	0,828	0,705	0,553	
80,0	0,938	0,934	0,926	0,914	0,898	0,860	0,756	0,623	
85,0	0,953	0,950	0,944	0,935	0,923	0,893	0,811	0,701	
90,0	0,969	0,967	0,962	0,956	0,948	0,927	0,870	0,789	
95,0	0,984	0,983	0,981	0,978	0,974	0,963	0,933	0,889	
100,0	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	

der verschiedenen Materialien zu erhalten. Die monochromatischen Absorptionskoeffizienten dafür stammen — wie analog in Abschnitt 4.7 am Beispiel von Wellenlängenschiebern bereits praktiziert — aus Mittelwertbildungen verschiedener bestrahlter und unbestrahlter Proben. Vergleiche der Intensitätsverläufe bestrahlter und unbestrahlter Proben erlauben daraus die Vermessung von Nichtuniformitäten.

Die deutlichsten Effekte zeigen sich am Randbereich des Szintillators. Hier sind die Signalunterschiede bezogen auf den Szintillatormittelpunkt am größten. Deshalb sei die durch Bestrahlung hervorgerufene Nichtuniformität definiert durch den Quotienten aus den Signalverhältnissen Probenrand zu Probenmitte bei bestrahlter und unbestrahlter Probe

$$NU(x) = \frac{I_{horr,b}(x)/I_{horr,b}(x=\text{Mitte})}{I_{horr,u}(x)/I_{horr,u}(x=\text{Mitte})}.$$
(5.8)

Die Indices b und u bezeichnen die bestrahlte bzw. unbestrahlte Probe.

Die so definierte Nichtuniformität ist unabhängig von der Art des Korrekturmusters K(x), da sich die K(x) in den Quotienten herauskürzen. Es muß also keineswegs die idealisierte Form in Abbildung 5.4 vorliegen:

$$NU(x) = \frac{I_b(x)/I_b(x=\text{Mitte})}{I_u(x)/I_u(x=\text{Mitte})}.$$
(5.9)

Abbildung 5.5 zeigt die Nichtuniformität als Funktion des Szintillatorortes mit der Strahlungsdosis als Parameter. Tabelle 5.1 listet die Daten dazu auf. Dabei ist die Abnahme der Fluoreszenzintensität nach Bestrahlung nicht berücksichtigt, die Probenmitten wurden willkürlich auf die Intensität I(x=Mitte) = 1 normiert.

Bei der Deutung dieser Ergebnisse sind die oben genannten Einschränkungen zu beachten. So sind die Randwerte aufgrund der benachbarten Wellenlängenschieber im realen Detektor sicherlich ungenau.

Vergleicht man die durch Bestrahlung von 3kGy hervorgerufene Nichtuniformität mit der konstruktionsbedingt ohnehin vorhandenen Nichtuniformität von $\pm 2\%$ für EMC und $\pm 4\%$ für HAC, so überwiegt letztere deutlich.

Es läßt sich also folgern, daß der zu erwartende Strahlungsuntergrund im ZEUS-Detektor so geringe zusätzliche Nichtuniformitäten der Szintillatoren hervorruft, daß hierdurch kaum Einfluß auf die Kalorimetereigenschaften spürbar wird.

Zu c): Die Ortsbestimmung



Die im vorhergehenden Abschnitt besprochene ortsabhängige Signalintensität des linken und rechten Auslesekanals ermöglicht eine Ortsrekonstruktion. Das Verhältnis der Signalintensitäten E_{rechts}/E_{links} erlaubt die Berechnung der Horizontalkoordinate x des Anregungsortes. Vereinfachend läßt sich in einiger Entfernung vom Szintillatorrand mittels einfachen Exponentialansat-

chen inder sich in einiger Entrernung vom Szintillatorrand mittels einfachen Exponentialansatzes (mit $\overline{\mu}$ als effektivem Absorptionskoeffizienten) die Ortsposition des einfallenden Teilchens abschätzen [Zeu93]:

120

$$x = 100 \text{ mm} + \frac{1}{2\overline{\mu}} \cdot \ln \frac{E_{rechts}}{E_{lanks}}.$$
 (5.10)

Durch Bestrahlung hervorgerufene Änderungen des Absorptionskoeffizienten wirken sich auf die Ortsrekonstruktion aus.

Abbildung 5.6 zeigt die Ortsposition des senkrecht einfallenden anregenden Teilchens aufgetragen gegen das Rechts/Links – Verhältnis beider Auslesekanäle für verschiedene Strahlungsdosen (links = 0 mm, rechts = 200 mm). Die Daten wurden aus der im vorausgegangenen Abschnitt errechneten ortsabhängigen Signalantwort des Szintillators (Abbildung 5.4) gewonnen. Aus Symmetriegründen wurde nur eine Szintillatorhälfte bis zur Ortsposition 100 mm ausgewertet. Die zweite Hälfte errechnet sich aus den Kehrwerten des ersten Teils in umgekehrter Reihenfolge (also: Rechts- Links-Verhältnis (x=110 mm) = 1/(Rechts- Links-Verhältnis (x=90 mm)) usw.).

Die Kurven zeigen, daß sich mit zunehmender Dosis die zu einem bestimmten Rechts/Links – Verhältnis gehörende Ortskoordinate verschiebt. Zur Verdeutlichung des Effektes sei von der unbestrahlten Beziehung Ortsposition (E_{rechts}/E_{linke}) ausgegangen. Die Differenz der aus den Rechts/Links – Verhältnissen einer unbestrahlten und einer bestrahlten Probe rekonstruierten Ortspositionen aufgetragen gegen den Einschußort (ebenfalls aus der unbestrahlten Probe rekonstruiert) zeigt Abbildung 5.7. Die Kurven geben also den systematischen Ortsfehler wieder, den man bei Anwendung der Ortseichung aus dem Rechts/Links – Verhältnis des unbestrahlten Kalorimeters auf mit den genannten Dosen bestrahlte Szintillatoren erhält. Hierbei wurde von idealer, also fehlerloser Ortsrekonstruktion für den unbestrahlten Zustand ausgegangen.

Bewertung des systematischen Ortsfehlers durch Bestrahlung Bei den genannten Betrachtungen zur Ortsrekonstruktion wurde bislang eine wichtige Fehlerquelle ausgeklammert. Von entscheidender Bedeutung für die Genauigkeit der Ortsbestimmung ist die Photoelektronenstatistik der beteiligten Auslesekanäle. Zum besseren Verständnis sei ein vereinfachtes Verfahren zur Abschätzung des statistischen Fehlers der Ortsbestimmung nach [Kla90] angedeutet.

Abbildung 5.8 zeigt eine durch lineare Intensitätsverläufe idealisierte Form der Abschwächung im Szintillator in gleicher Art wie Abbildung 5.4, wobei die Abszisse so versetzt wurde, daß die Szintillatormitte zum Nullpunkt wird. Als Ordinate ist die Zahl von Photoelektronen (pe) im jeweiligen Auslesekanal aufgetragen. Die zwei Geraden geben linearisiert die Zahl von Photoelektronen am linken $(N_L(x))$ und rechten $(N_R(x))$ Photomultiplier wieder. Beide lassen sich darstellen mit der Summe der Photoelektronen beider Auslesekanäle pro einfallender Teilchenenergie N $(N \cdot E = N_R(x) + N_L(x))$, der einfallenden Teilchenenergie E und der linearen Absorption m als lineare Funktion des Ortes x:

$$N_R(x) = \frac{N \cdot E}{2} \cdot (1 + m \cdot x)$$

$$N_L(x) = \frac{N \cdot E}{2} \cdot (1 - m \cdot x).$$
(5.11)





Abbildung 5.8: Linearisierter Intensitätsverlauf am rechten und linken Photomultiplier einer Kalorimetersektion zur Abschätzung des Ortsfehlers durch Photoelektronenstatistik

Hieraus läßt sich die Ortsposition berechnen als

$$x = \frac{1}{m} \cdot \frac{N_R(x) - N_L(x)}{N \cdot E}, \qquad (5.12)$$

woraus sich der Ortsfehler aufgrund der statistischen Schwankungen in $N_R(x)$ und $N_L(x)$ ergibt:

$$\sigma_{x,pe,u} = \frac{m^{-1}}{\sqrt{N \cdot E}}.$$
(5.13)

Dieser statistische Ortsfehler bewirkt im ZEUS-Kalorimeter eine Präzision von etwa (vgl. Tabelle 5.5)

$$\sigma_{s,pe} \approx \frac{5 \,\mathrm{cm}}{\sqrt{E}}.$$
 (5.14)

Dabei wurden $m^{-1} = 70$ cm und N = 200 pe angenommen. Weiter vergrößert wird die Ortsungenauigkeit im realen Detektorbetrieb durch die Ausdehnung einfallender Teilchenschauer, die z.B. im Falle von Hadronen mehrere Kalorimetertürme durchsetzen.

Unter Berücksichtigung dieser Aspekte wird der oben gezeigte systematische Ortsfehler – setzt man 3 kGy Gesamtdosis für ZEUS in 10 Jahren Betriebsdauer voraus – mit maximal 0,8 cm (s. Abbildung 5.7) in den meisten Fällen von den statistischen Fehlerquellen dominiert. Zum Verhalten der statistischen Orsauflösung nach Bestrahlung siehe Abschnitt 5.2.3 weiter unten.

5.2.2 Wellenlängenschieber

Ganz analog zu den im vorigen Abschnitt diskutierten Szintillatoren zeigen auch bestrahlte Wellenlängenschieber des ZEUS-Detektors zwei wesentliche Effekte.

1) Reduktion der Fluoreszenzlichtausbeute durch Zerstörung von Fluoreszenzfarbstoffen und Bildung von passiven Absoberzentren: Das Verhältnis der Fluoreszenzlichtintensitäten nach $(I_{fl,s})$ und vor $(I_{fl,w})$ Bestrahlung lautet in Abhängigkeit von der Dosis (D)

$$\left(\frac{I_{fl,b}}{I_{fl,b}}\right)_{WLS}(D) = 1 - (3 \pm 1) \cdot 10^{-6} \text{ Gy}^{-1} \cdot D.$$
 (5.15)

2) Bildung zusätzlicher passiver Absorptionszentren, die die Lichtausbreitung hemmen: Die Änderung des effektiven, über alle Emissionswellenlängen gemittelten exponentiellen Absorptionskoeffizienten (Erreichen des Endschadens angenommen) ($\Delta \mu$) mit der Dosis (D) lautet (Gl. 4.2):

$$\Delta \overline{\mu}_{WLS}(D) = (0, 6 \pm 0, 2) \cdot 10^{-6} \text{Gy}^{-1} \text{cm}^{-1} \cdot D.$$
 (5.16)

Dies führt beim Wellenlängenschieber zu zwei wesentlichen Auswirkungen:

- a) Beide Effekte führen zu verminderter Lichtabgabe des Wellenlängenschiebers, was letztlich die Zahl freigesetzter Photoelektronen/GeV am Photomultiplier und damit die Energieauflösung des Kalorimeters betrifft.
- b) Effekt 2) ist von Bedeutung bei der longitudinalen Uniformität der Kalorimeterauslese. Wie am Anfang des Kapitels im Abschnitt zur optischen Auslese beschrieben, ist der Wellenlängenschieber mit einem homogenisierenden Rückreflektor hinterlegt, um die Signalhöhe z.B. unabhängig vom Schauerschwerpunkt zu halten. Diese Homogenität wird durch strahlungsbedingte Änderung der Absorption im Material gestört.

Zu a): Die Lichtausbeute



Abbildung 5.9: Prinzipzeichnung eines Wellenlängenschiebers zur Szintillatorlichtauslese.

Analog zum gleichen Abschnitt über Szintillatoren (s. Gleichung 5.5) läßt sich auch hier das Verhältnis der Lichtintensitäten aus bestrahltem und unbestrahltem Wellenlängenschieber mit einem Exponentialansatz abschätzen. Aufgrund der langen Lichtwege in den hier betrachteten Geometrien liegt ein im Emissionsbereich von Y7 ($\lambda = 500-560$ nm) nur noch schwach mit der Wellenlänge veränderlicher Strahlungsschaden $\Delta \mu(\lambda)$ vor (vgl. Tabellen A.2 und 4.19). Deshalb gilt

$$\Delta \mu(\lambda) \approx \Delta \overline{\mu} \approx const.$$

Damit kann aus Gleichung 4.56 der Faktor $e^{-\Delta \overline{\mu} \cdot x}$ herausgezogen werden, was schließlich zur vereinfachten exponetiellen Darstellung führt:

$$V_{\text{WLS}}(x) = \frac{I_{0,b}}{I_{0,u}} \cdot e^{-\Delta \vec{\mu} \cdot x} \cdot \frac{1 + R \cdot e^{-2(\vec{\mu} + \Delta \vec{\mu}) \cdot (L-x)}}{1 + R \cdot e^{-2\vec{\mu} \cdot (L-x)}}.$$
 (5.17)

Im Unterschied zu den Szintillatoren ist die dem Photomultiplier gegenüberliegende Wellenlängenschieberkante mit einem Aluminiumreflektor abgeschlossen, so daß hier 0,89 als Reflexionskoeffizient anzusetzen ist.

Erhebliche Unterschiede in der Geometrie der Wellenlängenschieber für die Kalorimetertypen und -sektionen machen getrennte Rechnungen notwendig. Abbildung 5.9 zeigt die Skizze eines Wellenlängenschiebers. Für die Berechnung wichtige Daten sind die Länge der aktiven Zone a und die Gesamtlänge L. Zur Abschätzung der Intensitäten soll vom Anregungsort in der Mitte der Aktiven Zone ausgegangen werden. Es ergibt sich dann für den mittleren Lichtweg im Wellenlängenschieber $\overline{x} = L - a/2$.

Tabelle 5.3: Tabelle der Fluoreszenzlichtausbeuten verschiedener Wellenlängenschieber nach Bestrahlung mit 3 kGy relativ zum unbestrahlten Zustand bei angenommener Anregung in der Mitte der aktiven Zone.

wls-Typ	L(cm)	a(cm)	$\overline{\mu}(10^{-3} \mathrm{cm}^{-1})$	₹(cm)	V _{WLS}
FEMC1	190	23	5,26	178	0,79
FHAC11	169	64	5,65	137	0,82
REMC	121	21	7,94	111	0.86
FHAC21, RHAC11	102	64	7,94	70	0.89

Beispielhaft wurden vier Wellenlängenschiebertypen, die den häufigsten in Vorwärts- und Rückwärtskalorimeter befindlichen Geometrien entsprechen, ausgewählt. Diese sind:

- FEMC1: 4,6 cm breiter Wellenlängenschieber der häufigsten EMC-Sektionen im Vorwärtskalorimeter.
- FHAC11: 20 cm breiter Wellenlängenschieber der häufigsten HAC1-Sektionen im Vorwärtskalorimeter.
- REMC: 9,6 cm breiter Wellenlängenschieber der häufigsten EMC-Sektionen im Rückwärtskalorimeter.
- FHAC21, RHAC11: Mittelwert aus den häufigsten Wellenlängenschiebern der HAC2-Sektionen des Vorwärtskalorimeters (FHAC21) und der HAC-Sektionen des Rückwärtskalorimeters (RHAC11A und RHAC11S).

Tabelle 5.3 stellt für diese vier Typen die unterschiedlichen Längen der Proben L, Längen des aktiven Bereiches a, mittleren Absorptionskoeffizienten $\overline{\mu}$, mittleren Lichtwege \overline{x} und daraus erwarteten Lichtausbeuteverhältnisse VWLS bei einer Dosis von 3 kGy zusammen.

Erwartungsgemäß zeigen die Wellenlängenschieber, in denen die längsten Lichtwege zurückzulegen sind, die größten Intensitätseinbußen. Die Bewertung der Lichtverluste wird weiter unten im Abschnitt 5.2.3 zusammen mit denen der Szintillatoren vorgenommen.

Zu b): Die Uniformität

Der ortsabhängige Verlauf der Wellenlängenschieberintensität läßt sich in ausreichender Näherung mit dem durch ein Reflektormuster K(x) korrigierten exponentiellen Verlauf von Gleichung 5.5 annähern. Im Gegensatz zu entsprechenden Betrachtungen über Uniformität am



Abbildung 5.10: Berechnete maximale Nichtuniformität der verschiedenen Wellenlängenschiebertypen nach Bestrahlung aufgetragen gegen die absorbierte Dosis.

Szintillator fallen beim Wellenlängenschieber die Probleme durch überexponentiellen Signalanstieg am Probenrand nicht so stark ins Gewicht. Hier gibt es immer rein lichtleitende Materialstücke von mindestens einigen 10 cm Länge (Lichtleitzone, Endstück in Abbildung 5.9), die die kurzwelligeren spektralen Anteile mit großen Absorptionskoeffizienten $\mu(\lambda)$ ausfiltern. Es kann also ohne Verwendung der Simulation "quaderatten" bei den Wellenlängenschiebern mit einem über alle Wellenlängen gemittelten Absorptionskoeffizienten $\overline{\mu}$ das Abschwächverhalten ausreichend genau beschrieben werden.

Zur Bestimmung der durch Bestrahlung erworbenen Nichtuniformität wird wieder das Verhältnis aus den Intensitätsverläufen der bestrahlten und unbestrahlten Proben aus Gleichung 5.17 herangezogen. Dieses Verhältnis ist unabhängig von der Art des Korrekturmusters K(x); es bestimmt also die relative Änderung des Signalverlaufs bezogen auf die unbestrahlte Probe. Zum Vergleich der Intensitätsverläufe seien die Intensitäten am Ende des Wellenlängenschiebers gleichgesetzt, also $V_{WLS}(x=L) = 1$. Mit dieser Normierung kann – bezogen auf den Endpunkt – die relative Intensitätsänderung nach Bestrahlung bzw. Nichtuniformität NU_{WLS} ortsabhängig dargestellt werden. Sie folgt aus Gleichung 5.17 durch Einsetzen der Normierung:

$$NU_{WLS}(x) = e^{-\Delta \overline{\mu} \cdot (x-L)} \cdot \frac{1 + R \cdot e^{-2(\overline{\mu} + \Delta \overline{\mu}) \cdot (L-x)}}{1 + R \cdot e^{-2\overline{\mu} \cdot (L-x)}}.$$
 (5.18)

Zur Bewertung der Schädigung sollen die maximalen Nichtuniformitäten herangezogen wer-

den. Bei exponentiellem Verlauf ist die maximale Nichtuniformität bezogen auf das Probenende am Anfang des aktiven Probenbereiches zu erwarten, also am Orte x = L - a.

Abbildung 5.10 zeigt diese berechnete maximale Nichtuniformität aufgetragen gegen die Strahlungsdosis für die vier in Tabelle 5.3 aufgeführten Wellenlängenschiebertypen.

Tabelle 5.4 stellt anhand der vier Wellenlängenschiebertypen die bei der Konstruktion geforderte maximale Nichtuniformität NU_{ool} der zusätzlichen durch Bestrahlung mit 3kGy erworbenen Nichtuniformität NU_{ool} gegenüber.

Es wird deutlich, daß die größten Nichtuniformitäten bei kurzen Materialstücken mit großem aktiven Bereich auftreten (vgl. Tabelle 5.4). Diese in den hadronischen Kalorimeterteilen eingesetzten Wellenlängenschieber zeigen bei 3 kGy Bestrahlungsdosis eine zusätzliche Nichtuniformität von maximal $\pm 2\%$ durch Bestrahlung über den gesamten aktiven Auslesebereich. Die EMC-Wellenlängenschiebertypen mit ihrem nur etwa 20 cm langen aktiven Bereich zeigen bei 3 kGy weniger als maximal $\pm 0,3\%$ zusätzliche Nichtuniformität.

Tabelle 5.4: Tabelle der Nichtuniformitäten verschiedener Wellenlängenschieber vor [Zeu93] und nach Bestrahlung (berechnet) mit 3 kGy.

wls-Typ	L(cm)	a(cm)	$\overline{\mu}(10^{-3} \mathrm{cm}^{-1})$	₮ (cm)	NU _{soff} (%)	$NU_{red}(\%)$
FEMC1	190	23	5,26	178	±2,0	±0,3
FHAC11	169	64	5,65	137	±2,0	±1.7
REMC	121	21	7,94	111	±2,0	±0,3
FHAC21, RHAC11	102	64	7,94	70	±2,0	±2,2

Damit liegen bei Wellenlängenschiebern mit großer Länge und gleichzeitig kurzem aktiven Bereich die zu erwartenden Nichtuniformitäten durch Bestrahlung weit unterhalb der schon vor Bestrahlung vorhandenen Nichtuniformitäten (geforderte Fertigungsgenauigkeit für EMC-Wellenlängenschieber: $\pm 2\%$). Aber auch für die HAC-Wellenlängenschiebertypen gilt, daß die bei 3kGy erworbene zusätzliche Inhomogenität in den geforderten Grenzen der Fertigungsgenauigkeit liegt. Dieses gilt auch insbesondere deshalb, weil zur Abschätzung der Schädigung stets Maximalannahmen zugrundegelegt wurden. Die genannten Erwartungswerte der Bestrahlungsschäden stellen also Obergrenzen der zu erwartenden Schädigungen dar.

5.2.3 Gemeinsame Auswirkungen

Während die Uniformitätsbetrachtungen zu den Szintillatoren und Wellenlängenschiebern jeweils eine eigene Bedeutung haben, die in den vorangegangenen Abschnitten bereits diskutiert wurde, wirken sich Farbstoffzerstörung und Lichtabschwächung in beiden Stoffen gemeinsam auf die Lichtmenge im Photomultiplier aus. Über die Photoelektronenstatistik beeinflußt beides letztlich die Energieauflösung des Kalorimeters.

Zur Abschätzung der Gesamtintensität nach einer Bestrahlung am Photomultipier des Wellenlängenschiebers seien die jeweiligen Lichtausbeuten an Szintillator (Gl. 5.6) und Wellenlängenschieber (Gl. 5.17 in Verbindung mit 5.15 und 5.16) zur relativen Gesamtlichtausbeute L_{pm} am Photomultiplier verknüpft. Dabei seien die oben genannten mittleren Lichtwege im jeweiligen Material \mathcal{I}_{SCI} bzw. \mathcal{I}_{WLS} angenommen:

$$L_{pm}(D) = V_{SCI}(\overline{x}_{SCI}, D) \cdot V_{WLS}(\overline{x}_{WLS}, D)$$
(5.19)



Abbildung 5.11: Berechnete relative Lichtausbeute der verschiedenen Wellenlängenschiebertypen nach Bestrahlung aufgetragen gegen die absorbierte Dosis.

Abbildung 5.11 zeigt die so berechnete Lichtausbeute als Funktion der Bestrahlungsdosis für die vier in Tabelle 5.4 genannten Wellenlängenschiebertypen.

Aus den Lichtausbeuten der verschiedenen Kalorimetersektionen lassen sich die Veränderungen von Orts- und Energieauflösung nach Bestrahlung im Vergleich zum unbestrahlten Zustand abschätzen.

Der statistische Ortsfehler durch Photoelektronenstatistik im unbestrahlten Zustand $\sigma_{x,ye,u}$ wurde näherungsweise durch Gleichung 5.13 berechnet. Nach Bestrahlung vermindert sich die Zahl der Photoelektronen um den Faktor L_{pm} , so daß für die Ortsaufiösung dann gilt:

$$\sigma_{x,pe,b} = \frac{\sigma_{x,pe,u}}{\sqrt{L_{pm}}}.$$
 (5.20)

Die Energieauflösung vor Bestrahlung $\sigma_{E,u}$ sei geschrieben als quadratische Addition zweier Beiträge, wobei $\sigma_{E,int}$ alle Fehlerquellen außer der Photoelektronenstatistik beinhaltet und $\sigma_{E,pe,u}$ den Fehleranteil durch Photoelektronen repräsentiert:

$$\sigma_{E,u} = \frac{1}{\sqrt{E}} \cdot \sqrt{\sigma_{E,int}^2 + \sigma_{E,ye,u}^2}.$$
 (5.21)

Der Beitrag durch Photoelektronenstatistik ist mit der Zahl der Photoelektronen an beiden

Photomultipliern N. darstellbar durch

$$\frac{\sigma_{E,pe,u}}{E} = \frac{1}{\sqrt{N_u}\sqrt{E}}.$$
 (5.22)

Nach Bestrahlung verringert sich die Photoelektronenausbeute um den Faktor L_{pm} , so daß $N_b = N_u \cdot L_{pm}$. Das bedeutet für den Beitrag durch Photoelektronenstatistik nach Bestrahlung:

$$\frac{\sigma_{E,pe,b}}{E} = \frac{1}{\sqrt{L_{pm}}} \cdot \frac{\sigma_{E,pe,u}}{E}.$$
(5.23)

Damit ändert sich die Gesamtenergieauflösung nach Bestrahlung durch die verrringerte Zahl an Photoelektronen auf:

$$\sigma_{E,\flat} = \frac{1}{\sqrt{E}} \cdot \sqrt{\sigma_{E,u}^2 + \sigma_{E,\varphi e,u}^2 \cdot \left(\frac{1}{L_{pm}} - 1\right)}.$$
(5.24)

Tabelle 5.5: Tabelle der Nichtuniformitäten verschiedener Wellenlängenschieber vor [Zeu93] und nach Bestrahlung (berechnet) mit 3kGy.

wls-Typ	Lichtausbeute	L _{pm}	σ _{s.pe,u}	σ _{z pe}	<u>ев.н.ч</u> Е	<u>11.1</u> E	<u>"</u> E
	$\left(\frac{P^{4}}{GeV \cdot PM}\right)$		$\left(\frac{cm}{\sqrt{OeV}}\right)$	$\left(\frac{cm}{\sqrt{GeV}}\right)$	$\left(\frac{\mathbf{x}}{\sqrt{GeV}}\right)$	$\left(\frac{\mathbf{x}}{\sqrt{GeV}}\right)$	$\left(\frac{\mathbf{x}}{\sqrt{G \cdot V}}\right)$
FEMC1	112 ± 12	0,72	4,7	5,5	6,7	18	18,5
FHAC11	186 ± 31	0,74	3,6	4,2	5,2	35	35,1
REMC	139	0,78	4,2	4,8	6,0	18	18,3
FHAC21, RHAC11	202 ± 42	0,80	3,5	3,9	5,0	35	35,1

In Tabelle 5.5 sind für die verschiedenen Wellenlängenschiebertypen die Lichtausbeute vor Bestrahlung in Photoelektronen pro GeV und Multiplierröhre [Zeu93], die relative Gesamtlichtausbeute L_{pm} nach Bestrahlung und die durch Photoelektronenstatistik beeinflußten Größen Orts- und Energieauflösung vor und nach Bestrahlung zusammengestellt. Die Angaben zu $\sigma_{E,u}$ sind [Zeu93] entnommen.

Es wird deutlich, daß am stärksten die langen Wellenlängenschieber der EMC-Sektionen von der verringerten Zahl an Photoelektronen betroffen sind. So vergrößert sich die statistische Ortsunschärfe um maximal 7 mm/ $\sqrt{E(GeV)}$ bei den FEMC1, bei den FHAC21/RHAC11-Typen sind es noch 3 mm/ $\sqrt{E(GeV)}$. Dennoch liegen diese zusätzlichen Ortsunschärfen in der Größenordnung der durch Exemplarstreuungen hervorgerufenen und somit ohnehin vorhandenen Schwankungen. Ähnliches gilt auch für die Energieauflösung. Im Falle der FEMC1 vergrößert sie sich um $0,4 \%/\sqrt{E(GeV)}$ auf 18,4 $\%/\sqrt{E(GeV)}$, während die Änderung in den HAC-Sektionen sogar nur $0,1 \%/\sqrt{E(GeV)}$ beträgt. Diese Werte sind deutlich kleiner, als die Exemplarstreuungen der Energieauflösung der unbestrahlten Sektionen. So beträgt für die FCAL-EMC-Sektionen bei 15 GeV Elektronen die Energieauflösung z.B. 18 $\% \pm 1 \%$ [Zeu93].

Wenn man in diesem Zusammenhang bedenkt, daß viele zu den obigen Ergebnissen führende Abschätzungen Maximalannahmen enthalten, so läßt sich erwarten, daß auch nach 10 Jahren ZEUS-Betriebszeit die strahlungsbedingten Materialänderungen in den Kalorimetereigenschaften kaum spürbar werden dürften.

5.3 Schlußfolgerungen

128

Die hier gezogenen Schlußfolgerungen bezüglich der Strahlungsbeständigkeit des ZEUS-Kalorimeters beruhen auf den in diesem Kapitel durchgeführten Modellrechnungen, die ihrerseits die Meßergebnisse an den jeweiligen Materialien zur Grundlage haben. Es wurden in den Rechnungen viele Maximalannahmen gemacht, die alle angegebenen Erwartungswerte zu Obergrenzen der zu erwartenden Schäden machen.

Die hier zusammengefaßten Zahlen gehen von 10 Jahren Betriebsdauer des ZEUS-Detektors in Normaldruck-Luftumgebung bei Zimmertemperatur aus. Die gesamte in diesem Zeitraum vom Kalorimeter absorbierte Dosis wird als homogen im Kalorimeter verteilt angenommen und mit 3 kGy abgeschätzt. Weiterhin wird aufgrund der mit 0,04 Gy/h angenommenen, geringen Dosisleistung in Kalorimeter davon ausgegangen, daß alle betrachteten Szintillatoren und Wellenlängenschieber sich während des Betriebes im Endschadenszustand befinden. Dabei wird die Endschadenshöhe als von der Dosisleistung unabhängig angesehen. Alle Aussagen berücksichtigen nicht die Schauerverteilung realer Ereignisse im Kalorimeter. Um für bestimmte Teilchensorten und -energien quantitative Aussagen machen zu können, müßte eine Faltung der hier dargestellten Ergebnisse mit der jeweiligen Schauerverteilung durchgeführt werden. Unter diesen Voraussetzungen lassen sich folgende Aussagen machen:

Im Szintillator wird nach Bestrahlung eine maximale Nichtuniformität des Summensignals beider Auslesekanäle von $\pm 1\%$ am Szintillatorrand erwartet. Dieser Wert liegt deutlich unterhalb den zugelassenen Fertigungsschwankungen von $\pm 2\%$ bei EMC- bzw. $\pm 4\%$ bei HAC-Szintillatoren und dürfte deshalb nicht meßbar werden.

Durch verändertes Abschwächverhalten nach Bestrahlung im Szintillator wird sich die Ortsrekonstruktion systematisch um maximal 0,8 cm gegenüber der Rekonstruktionsfunktion vor Bestrahlung verändern. Gegenüber etwa 5 cm/ $\sqrt{E(GeV)}$ statistischem Ortsfehler spielt dieser Beitrag in den meisten Fällen keine Rolle. Hinzu kommt, daß die Ortsrekonstruktion mit einer Näherung erfolgt, deren systematischer Fehler am Szintillatorrand ebenfalls in der Größenordnung 1 cm liegt (vgl. Gleichung 5.10 bzw. [Zeu93]).

Die Nichtuniformität der Signalauslese entlang den aktiven Zonen der Wellenlängenschieber wird nach 10 Jahren Betrieb maximal $\pm 2\%$ betragen. Dieses gilt für die beiden Randpositionen der aktiven Zone am kürzesten Wellenlängenschiebertyp mit der längsten aktiven Zone. Bei anderen Wellenlängenschiebertypen liegen die Nichtuniformitäten nach Bestrahlung zum Teil deutlich darunter (FEMC: maximal $\pm 0,3\%$). Auch hier sind die zusätzlichen durch Bestrahlung erworbenen Nichtuniformitäten teilweise deutlich kleiner als die Fertigungstoleranzen von etwa $\pm 2\%$ und lassen deshalb keine merklichen Auswirkungen auf die Kalorimetereigenschaften spürbar werden.

Der Lichttransport durch Szintillator und Wellenlängenschieber reduziert nach Bestrahlung die Lichtausbeute durch Zertörung von Farbstoffmolekülen und Erzeugung passiver Absorptionszentren in beiden Materialien. Je Nach Länge des Wellenlängenschiebers wird in 10 Jahren Betriebsdauer die Lichtausbeute von anfangs 100% auf 72% (EMC) bis 80% (HAC) zurückgehen.

Das hat über die Photoelektronenstatistik Auswirkungen auf die statistische Ortsauflösung, die sich um $0.3 \text{ cm}/\sqrt{E(\text{GeV})}$ (HAC) bis $0.7 \text{ cm}/\sqrt{E(\text{GeV})}$ (EMC) auf $3.8 \text{ cm}/\sqrt{E(\text{GeV})}$ (HAC) bis $5.4 \text{ cm}/\sqrt{E(\text{GeV})}$ (EMC) vergrößert, was aber keine deutliche Verschlechterung darstellt.

Auch die Energieauflösung ist betroffen vom Lichtausbeuteverlust, weil der Beitrag der Photoelektronenstatistik zur Energieauflösung wächst. Die Gesamtenergieauflösung ist in al-

len Fällen aber nur sehr schwach betroffen. Denn gemessen an den durch Exemplarstreuungen hervorgerufenen Schwankungen der Energieauflösung in den verschiedenen Kalorimetertürmen von z.B. etwa $\pm 1\%/\sqrt{E(GeV)}$ (EMC), ist das Anwachsen der Energieauflösung um $0,4\%/\sqrt{E(GeV)}$ auf $18,4\%/\sqrt{E(GeV)}$ (EMC) gering. Die Auswirkungen werden noch geringer in den HAC-Türmen, hier sind nur Veränderungen von etwa $0,1\%/\sqrt{E(GeV)}$ auf $35,1\%/\sqrt{E(GeV)}$ zu erwarten.

Abschließend kann gesagt werden, daß während des 10-jährigen ZEUS-Betriebes bei einer angenommenen homogenen Gesamtdosis von 3 kGy die Veränderungen der optischen Komponenten des Kalorimeters durch die Bestrahlung keinen störenden Einfluß auf die Kalorimetereigenschaften ausüben sollten.

Zusammenfassung

In dieser Arbeit werden verschiedene Untersuchungsmethoden von optischen Eigenschaften polymerer Szintillatoren und Wellenlängenschieber für die Verwendung in Detektoren der Hochenergiephysik vorgestellt. Insbesondere die Basismaterialien Polymethylmethacrylat (PMMA) und Polystyrol (PS) als auch Beimengungen verschiedener Fluoreszenzfarbstoffe und UV-Absorber sind Gegenstand der Untersuchungen.

Der Strahlungsuntergrund an Teilchenbeschleunigern kann zu unerwünschten Materialveränderungen an den optischen Komponenten der Detektoren führen. Aus diesem Grunde wurden Testbestrahlungen an verschiedenen Bestrahlungsquellen und unter wechselnden Bedingungen an verschiedenen Stoffen durchgeführt und die Auswirkungen studiert. Im Vordergrund standen optische Untersuchungen der Transmission und Fluoreszenz der Proben, aus denen Erkenntnisse über die Bildung zusätzlicher bzw. die Zerstörung vorhandener Absorptionszentren gewonnen wurden. Zu Testbestrahlungen standen sowohl γ -Strahlung (⁶⁰Co-Quelle) als auch Neutronen (schnelle und thermische Reaktorneutronen) zur Verfügung. Zur Dosimetrie wurden u.a. Alanine eingesetzt, die mittels Elektronen-Spin-Resonanz (ESR) ausgewertet wurden und eine eigene Kalibration des verwendeten ESR-Spektrometers notwendig machten.

An allen untersuchten Materialien konnten im Dosisbereich zwischen etwa 1 kGy und etwa 100 kGy unmittelbar nach Bestrahlungsende optisch sichtbare Veränderungen (Anfangsschaden) registriert werden. Diese unterliegen zeitlichen Veränderungen, wobei Sauerstoffanwesenheit zu einem Rückgang der Zahl zusätzlicher durch Bestrahlung erzeugter Absorptionszentren führt. Abhängig von der Diffusionskonstanten für Sauerstoff in den Materialien findet dieser Rückgang des Anfangsschadens auf einen zeitlich konstanten Endschaden im Verlauf einiger Tage (PS-Basis, 2,6 mm dicke Platten) bis zu einigen 100 Tagen (PMMA-Basis, 2 mm dicke Platten) statt. In PMMA-Materialien kann teilweise nach Bestrahlungsende ein weiteres Anwachsen der Zahl zusätzlicher Absorptionszentren, der "build up" Effekt, beobachtet werden. In guter Näherung ließen sich in den meisten Fällen für Anfangs- und Endschäden lineare Zusammenhänge zwischen absorbierten Strahlungsdosen und optischen Schadenshöhen im genannten Dosisbereich beobachten.

Neben der Ausheilung von Strahlungsschäden durch Sauerstoff wird teilweise auch eine stärkere Zerstörung für die betrachteten Materialien gemessen, falls während der Bestrahlung Sauerstoff anwesend ist. Dennoch ist Sauerstoffanwesenheit während der Bestrahlung in Detektoren der Teichenphysik notwendig, um ein Ausheilen schon während der Bestrahlung zu ermöglichen. Nach Testbestrahlungen mit unterschiedlichen Dosisleistungen und mit unterschiedlichen Sauerstoffpartialdrucken konnte sowohl für Wellenlängenschiebermaterial auf PMMA-Basis als auch für Szintillatormaterial auf PS-Basis eine Grenzdosisleistung bestimmt werden, unterhalb der die Stoffe sich auch während der Bestrahlung ständig im Endschadenszustand befinden.

Am Beispiel des ZEUS-Experimentes am HERA Teilchenbeschleuniger des DESY in Hamburg können bei Luftumgebung während der Bestrahlung für die im Kalorimeter eingesetzten optischen Polymere die Dosisleistungsgrenzen für ständigen Endschadenszustand abgeschätzt werden. Nach Berechnungen mit einem zugrunde gelegten Diffusionsmodell ist das in 2 mm dicken Platten vorliegende Wellenlängenschiebermaterial auf PMMA-Basis unterhalb einer Dosisleistung von 0,44 Gy/h ständig im Endschadenszustand, während die 2,6 mm dicken Szintillatorplatten des Kalorimeters auf PS-Basis schon unterhalb einer Dosisleistung von 57 Gy/h den Endschadenszustand erreichen. Mit einer geschätzten Dosisleistung im ZEUS-Kalorimeter von weniger als 0,04 Gy/h werden die polymeren optischen Komponenten des ZEUS-Kalorimeters also stets im Endschadenszustand vorliegen.

Vergleiche zwischen Schädigungen durch γ - und Neutronenbestrahlung lassen im Rahmen der Nachweisgenauigkeiten für ZEUS-Wellenlängenschiebermaterialien keine Unterschiede erkennen. Bei SCSN-38 scheinen die Neutronen eine größere Zahl zusätzlicher Absorptionszentren zu erzeugen, als dies bei γ -Bestrahlungen mit gleicher Dosis der Fall ist. LET-Effekte könnten hierfür verantwortlich sein.

Bei Testreihen mit unterschiedlich abschneidenden UV-Absorbern in Wellenlängenschiebern hat sich der im ZEUS-Kalorimeter eingebaute Wellenlängenschieber mit 360 nm UV-Absorber als bestes der zur Verfügung stehenden Materialien erwiesen. Einerseits werden kurzwellige Lichtanteile wirksam unterdrückt, andererseits bildet nur der 360 nm UV-Absorber im Vergleich mit Materialien ohne UV-Absorber nahezu keine zusätzlichen Absorptionszentren.

Zur Simulation von Lichtwegen in quaderförmigen Proben wurde ein Modell entworfen und als C-Programm realisiert. Es ermöglicht die Zusammenführung spektraler Daten wie Absorptionskoeffizienten und Intensitäten zu über alle Wellenlängen integrierten Gesamtsignalen. Damit sind Umrechnungen der Ergebnisse aus unterschiedlichen optischen Meßverfahren ineinander möglich. Insbesondere erlaubt die Simulation eine Übertragung von Meßergebnissen auf andere Geometrien und optische Komponenten. So lassen sich Resultate aus der Schädigung kompakter Proben unter Berücksichtigung spektraler Detektorempfindlichkeiten auf wesentlich größere Geometrien übertragen. Speziell wurde eine Interpretation der gewonnenen Erkenntnisse auf die Verhältnisse im ZEUS-Kalorimeter möglich.

Setzt man voraus, daß sich die Szintillatoren und Wellenlängenschieber des ZEUS-Kalorimeters ständig im Zustand des Endschadens befinden, und daß sie in 10 Jahren Betriebszeit in Luftumgebung etwa 3 kGy Gesamtdosis absorbieren, so können folgende Aussagen abgeleitet werden: Die durch Bestrahlung hervorgerufenen zusätzlichen Nichtuniformitäten der Signalauslese sind geringer als die zugelassenen Fertigungstoleranzen und werden keine störenden Auswirkungen auf die Kalorimetereigenschaften haben. Die strahlungsbedingte Bildung zusätzlicher Absorptionszentren und Zertörung von Fluoreszenzfarbstoffen in Szintillatoren und Wellenlängenschiebern aller Kalorimetersektionen führt zu keiner nennenswerten Beeinträchtigung von Orts- und Energieauflösung durch verminderte Photoelektronenstatistik.

Das ZEUS-Kalorimeter wird unter den gemachten Voraussetzungen also keinen strahlungsbedingten störenden Einfluß auf die Kalorimetereigenschaften erleiden.

Die relative Zahl zerstörter Farbstoffe ergibt sich dann aus:

$$q_{\text{flue}} = 1 - f. \tag{A.5}$$

Abbildung A.1 zeigt die relative Fluoreszenzintensität als Funktion einer Änderung der Farbstoffzahl (sowohl Zunahme als auch Abnahme) mit der Transmission T durch die unveränderte Probe als Parameter.



"spuriose" Farbstoffzerstörungen durch Bestrahlung, die nicht auch wieder zusätzliche Absorptionszentren bilden. kaum vor. So wird bei Strahlungseinwirkung nicht nur der Fluoreszenzfarbstoff in seiner Zahl verringert (negative Differenz der Absorptionskoeffizienten $\Delta \mu_{-}$), sondern zugleich eine zusätzliche Absorption (positive Differenz der Absorptionskoeffizienten $\Delta \mu_{\pm}$) durch passive Zentren erzeugt, die kein Fluoreszenzlicht emit-Anregungsintensität von den passiven Zentren absorbiert

In der Praxis kommen

Abbildung A.1: Berechnete relative Fluoreszenzlichtausbeute in einer plattenförmigen Probe in Abhängigkeit von der relativen Farbstoffdichte mit der Transmission T durch die Platte als Parameter (s. Text). dir kein Fluoreszenzlicht emittieren. Damit wird ein Teil der Anregungsintensität von den

und den Fluoreszenzzentren vorenthalten, so daß sich daraus eine weitere effektive Verringerung der Fluoreszenzausbeute — bezogen auf die angebotenen Anregungsintensität — ergibt. Gleichung A.3 ändert sich damit in:

$$I_{\text{relativ}} = \frac{e^{-\Delta\mu + s} (1 - e^{-(\mu_0 + \Delta\mu_-)s})}{1 - e^{-\mu_0 s}},$$

= $\frac{e^{-\Delta\mu + s} - e^{-(\mu_0 + \Delta\mu_- + \Delta\mu_+)s}}{1 - e^{-\mu_0 s}}.$ (A.6)

A.2 Vergleichbarkeit von Transmissions- und Fahrtischmessung

Transmissions- und Fahrtischmessungen dienen zur Schadensüberwachung bestrahlter Proben in unterschiedlichen Wellenlängenbereichen: Transmissionsmessungen an Materialien von einigen mm Dicke erlauben die Untersuchung der Bereiche, in denen Farbstoffe und Matrix absorbieren. Wegen der relativ dazu großen Abschwächlängen ist mit diesem Verfahren eine Überwachung der Transmission bei Emissionswellenlängen ungenau. Hier liefert eine ortsabhängige Fluoreszenzanregung über einige 10 cm mit Vermessung des Fluoreszenzlichtes genauere Werte. In vielen Betrachtungen werden beide Bereiche der Emission und Absorption von Licht in getrennten Fragestellungen untersucht, so daß eine direkte Übertragung der jeweils gewonnenen Erkenntnisse oft nicht notwendig ist.

Anhang A

Ergänzungen

A.1 Fluoreszenzlichtausbeute und Farbstoffkonzentration

Eine einfache Überlegung soll die Zahl zerstörter Farbstoffe aus dem Intensitätsverhältnis $I_{relativ} = I_{I\!\!I,b}/I_{I\!\!I,0}$ bestrahlter und unbestrahlter Proben liefern. Dabei sei vorausgesetzt, daß die in einer Probe erzeugte Fluoreszenzlichtmenge $I_{I\!I}$ (isotrope Abstrahlung ohne Abschwächung durch Ausbreitung in der Probe vorausgesetzt) proportional der absorbierten Intensität I_{abe} der angebotenen Anregungslichtintensität I_0 ist:

$$I_{\rm fl} \propto I_{\rm abs} = I_0 (1 - e^{-\mu x}),$$
 (A.1)

wobei μ den Absorptionskoeffizienten für das anregende Licht und x die in der Probe vom anregenden Licht zurückgelegte Wegstrecke bezeichnen. Bei diesem einfachen Exponentialansatz werden mögliche Reflexionen an den Probenbegrenzungen, Streuung im Material und Selbstabsorption mit anschließender Reemission des Fluoreszenzlichtes nicht berücksichtigt. Ändert man in der Probe die Farbstoffkonzentration durch Zugabe weiterer Stoffe oder — wie in diesem Fall betrachtet — durch strahlungsbedingte Farbstoffzerstörung, so ist die relative Änderung der Absorptionszentren (hier die Farbstoffzahl) f nach dem Beerschen Gesetz gleich der relativen Änderung des Absorptionskoeffizienten (Index 0: Zustand ohne Änderung der Farbstoffzahl, Index: b nach dessen Änderung):

$$f = \frac{\mu_b}{\mu_0}.$$
 (A.2)

Für das Intensitätsverhältnis vor und nach Bestrahlung folgt damit:

$$I_{\text{relativ}} = \frac{1 - e^{-f\mu_0 x}}{1 - e^{-\mu_0 x}},$$
 (A.3)

oder mit der Transmission T für das anregende Licht im unbestrahlten Zustand:

$$I_{\text{relativ}} = \frac{1 - T'}{1 - T}.$$
 (A.4)
Sollen aber aus beiden Meßverfahren gewonnene Absorptionskoeffizienten verglichen werden oder – wie in Kapitel 5 – Ergebnisse aus beiden Verfahren zu Modellrechnungen herangezogen werden, so ist ein genauerer Vergleich beider notwendig.

Der wesentliche Unterschied neben den untersuchten Wellenlängenbereichen besteht in der Geometrie der Lichtausbreitung. Im Spektralphotometer werden nahezu parallele Lichtstrahlenbündel durch sehr dünne Proben gesandt. Die um die Oberflächenreflexionen korrigierten Transmissionen liefern die Grundlage zur Berechnung von Absorptionskoeffizienten (Gleichung 3.2), die in guter Näherung als Materialeigenschaften ohne geometriebedingte Einflüsse gelten können. Beim Fahrtisch sitzt die Lichtquelle in Gestalt des Fluoreszenzfarbstoffes in der Probe selbst. Isotrope Abstrahlung des Lichtes in alle Richtungen wird vorausgesetzt. Als Folge davon legt das Licht auf dem Weg zur Probenauslesekante richtungsabhängig unterschiedliche Wege zurück, der Abstand des Anregungsortes auf der Probe ist nicht identisch mit dem vom Licht zurückgelegten mittleren Weg.

Um diesen geometrischen Unterschied beider Meßverfahren zu berücksichtigen und die Ergebnisse der Fahrtischmessungen denen der Photometermessungen anzunähern, soll der mittlere zurückgelegte Lichtweg in der Probe am Fahrtisch ermittelt und mit ihm der Absorptionskoeffizient korrigiert werden.

Die Proben am Fahrtisch haben Abmessungen von typisch 200 mm x 40 mm x 3 mm. In ihnen breitet sich das Fluoreszenzlicht in alle Raumrichtungen gleichmäßig aus. Eine der typisch 40 mm x 3 mm großen Probenflächen wird ausgelesen; ein Photomultiplier wird hier ohne optische Ankopplung zur Messung die Probe verlassender Intensitäten verwendet. Bei der Abschätzung des mittleren Lichtweges sei von idealer Quaderform des Probenstückes mit idealen Oberflächen ausgegangen. Es sei angenommen, daß Lichtstrahlen unterhalb des Grenzwinkels der Totalreflexion die Probe verlassen, während Lichtstrahlen jenseits des Grenzwinkels zu 100 % in die Probe zurückreflektiert werden. Schießlich sei eine Selbstabsorption bereits emittierten Fluoreszenzlichtes mit anschließender Reemission vernachlässigt. Unter diesen Annahmen kann nur solches Licht die Probe verlassen, das innerhalb eines Kegels mit dem halben Öffnungswinkel der Totalreflexion um die Flächennormale der Auslesefläche vom Fluoreszenzfarbstoff abgestrahlt wurde. Andere Abstrahlungswinkel verlassen die Probe oder bleiben in ihr "gefangen", gelangen aber nie zum Detektor.

Unter diesen vereinfachenden Annahmen reduziert sich das Problem auf die Bestimmung des mittleren Lichtweges in einem Kegel mit dem halben Öffnungswinkel der Totalreflexion bei kugelsymmetrischer Abstrahlcharakteristik (s. Abb. A.2).

Der mittlere Lichtweg X läßt sich am einfachsten durch die Integration über eine Kugeloberfläche aller Lichtweglängen bis zur Kegelgrundfläche ermitteln: 136



Abbildung A.2: Zur Geometrie der Lichtausbreitung (s. Text).

$$\overline{X} = \frac{\int_{0}^{2\pi} \int_{0}^{\theta_{\sigma}} \frac{R_{0}}{\cos \vartheta} \sin \vartheta \, d\vartheta \, d\varphi}{\int_{0}^{2\pi} \int_{0}^{\theta_{\sigma}} \int_{0}^{\pi} \sin \vartheta \, d\vartheta \, d\varphi};$$
mit

$$\overline{X} : \text{mittlere Weglänge,}$$

$$R_{0} : \text{Abstand Anregungsort - Auslesefläche,}$$

$$\vartheta : \text{Abstrahlungswinkel eines Lichtstrahles,}$$
(A.7)

Grenzwinkel der Totalreflexion.

$$\overline{X} = R_0 \cdot \frac{\int\limits_{0}^{\theta_{\tau}} \tan \vartheta \, d\vartheta}{\int\limits_{0}^{\theta_{\tau}} \sin \vartheta \, d\vartheta} = R_0 \cdot \frac{[-\ln \cos \vartheta]_{0}^{\theta_{\tau}}}{[-\cos \vartheta]_{0}^{\theta_{\tau}}}; \quad (A.8)$$

$$= R_0 \cdot \frac{\ln \cos \vartheta_g}{\cos \vartheta_g - 1}. \tag{A.9}$$

Hiermit ist die Bestimmung der mittleren Weglänge im Material nach dem Einsetzen des Grenzwinkels der Totalreflexion möglich. Für Wellenlängenschieber (WLS) und Szintillator (SCI) ergeben sich in den jeweiligen Emissionsbereichen λ_{emiss} die dort wellenlängenunabhängigen Korrekturfaktoren $K_{LW} = \overline{X}/R_0$:

$$K_{LW} = \begin{cases} 1,13 & \text{für PS, n = 1,6 bei } \lambda_{emiss} \approx 450 \text{ nm} (\Rightarrow \vartheta_g = 38,3^\circ) \\ 1,15 & \text{für PMMA, n = 1,5 bei } \lambda_{emiss} \approx 550 \text{ nm} (\Rightarrow \vartheta_g = 42,1^\circ) \end{cases}$$
(A.10)

Setzt man einen einfachen exponentiellen Zusammenhang zwischen Intensität und zurückgelegtem Lichtweg an, so kann in erster Näherung die relative Verlängerung des mittleren Lichtweges K_{LW} reziprok als Korrekturfaktor für den Absorptionskoeffizienten aus Fahrtischmessungen verwendet werden, um das hier gegen den Anregungsort angepaßte μ auf einen mittleren Lichtweg zu korrigieren. Damit ist ein näherungsweises Verfahren zur Korrektur der unterschiedlichen Ausbreitungscharakteristika des Lichtes bei Fahrtisch- und Spektralphotometermessungen erläutert:

$$\mu_{Photom.} \approx \mu_{MeBt.} \cdot \frac{1}{K_{LW}}; \qquad (A.11)$$
mit
$$\mu_{Photom.} : Absorptionskoeffizient Spektralphotometer,$$

$$\mu_{MeBt.} : Absorptionskoeffizient Fahrtisch.$$

A.3 Simulation zur Lichtausbreitung in Quadern

A.3.1 Die Berechnung der Lichtausbreitung

Auf der Grundlage der in Abschnitt 4.7 entworfenen Berechnung von Lichtwegen in quaderförmigen Proben wird hier die daraus resutierende konkrete Anwendung im Simulationsprogramm "quaderatten" vorgestellt. Zu diesem Zweck muß Gleichung 4.56 in eine Summenschreibweise überführt werden:

$$\overline{I}(x) = \frac{\sum_{i=1}^{i=t_n} \sum_{t=1}^{t=t_n} \sin \vartheta_t \sum_{p=1}^{p \neq p_n} I_{geramt}(x, \lambda_i, \varphi_p, \vartheta_i)}{l_n \cdot p_n \cdot \sum_{t=1}^{t=t_n} \sin \vartheta_t}$$
(A.12)

mit:

- r Abstand des Anregungsortes von der Auslesefläche,
- λ_n Emissionswellenlänge in l_n diskreten Stufen im Intervall $[\lambda_e, \lambda_e]$,
- φ_n Azimutwinkel in p_n diskreten Stufen im Intervall $[0, 2\pi]$,
- ϑ Polarwinkel in t_n diskreten Stufen im Intervall $[0, \vartheta_{anse}]$,
- $I_0(\lambda_n)$ Intensität eines Lichtstrahls der Wellenlänge λ_n am Abstrahlungsort.

Nach Einsetzen von Gleichung 4.54 ergibt sich die in "quaderatten" verwendete Form der Intensitätsberechnung:

$$\overline{I}(x) = \frac{1}{l_n \cdot p_n \cdot \sum_{i=1}^{t \equiv i_n} \sin \vartheta_i} \cdot \sum_{l=1}^{t \equiv i_n} I_0(\lambda_l) \sum_{t=1}^{t \equiv i_n} \sin \vartheta_t T_A(\vartheta_l) \cdot \sum_{l=1}^{t = i_n} \frac{I_{kern}(x, \lambda_l, \varphi_p, \vartheta_l) + R_R(\vartheta_l) \cdot I_{kern}(2L - x, \lambda_l, \varphi_p, \vartheta_l)}{1 - I_{kern}(L, \lambda_l, \varphi_p, \vartheta_l)^2 \cdot R_A(\vartheta_l) \cdot R_R(\vartheta_l)}, \quad (A.13)$$

mit:

$$I_{kern}(x, \lambda, \varphi, \vartheta) = R_{seit}^{N_{min}(x, \varphi, \vartheta)} \cdot R_{deck}^{N_{deck}(x, \varphi, \vartheta)} \cdot e^{-\mu(\lambda)\frac{x}{\cos \vartheta}},$$

- Reeit Reflexionsvermögen der Seitenflächen des Quaders,
- R_{deck} Reflexionsvermögen der Deckflächen des Quaders,
- N Anzahl der Reflexionen an den Quaderflächen, mit den Indices:
- deck für Deckflächen des Quaders,
- mit für Seitenflächen des Quaders,
- L Abstand der Rückwand von der Auslesefläche,
- $R_A(\vartheta)$ Anteil des Lichtes, der an der Ausleseseite reflektiert wird,
- $R_R(\vartheta)$ Anteil des Lichtes, der an der Rückwand reflektiert wird,
- $T_A(\vartheta)$ Anteil des Lichtes, der die Ausleseseite durchdringt,
- $\mu(\lambda)$ wellenlängenabhängiger Absorptionskoeffizient.

A.3.2 Das Programm "quaderatten" mit Basisdatensätzen

138

<pre>training the form int Ji There, as in (1/M_AMCN)</pre>	<pre>mail mail mail mail mail mail mail mail</pre>	for (1thuts = 1) 1_there are N_META: 1_thereas) (threadby/ threadsheet.com threadsheet.com
Programma mur simulation von Pluerensenilichkeund Programma mur simulation von Pluerensenilichkeund per Instantiest. Barnuechsischigt nuchtiskale (host auf anzumen eine seiter und Boefflacchen sons en auf alle für Automomenten an andum. Jahr 11. Automomenten an andum. Automomenten an andum andum andum. Automomenten an andum an	 Production and Distance Lating Michaelessessessessessessessessessessessesses	<pre>(set verbanden */ (set verbanden */) set Banzaris Verriz, v/) == M(L_) / ("Deca) ("Charge and a set of the set of the E_verris) == Stythistoket is mich set of the E_verris) == 0 / (" solarge Fileench Acht se unders set(s.gent</pre>

Abbildung A.4: Quelltext des Simulationsprogrammes "quaderatten", Teil 2

140

139

DATE 1_Ambda-st SIE VI1.51EVN',

cient: cient: for 1: Limmbda = 1_LC (void) fprintfour ...

DOL THAT

te a la com

<u>}</u>

- ----

5

M.I.N ->

for (1_]ambda = I_LANDCa_FIART; 1_]amb integrand_theta=(dwuble)0.0;

ung der Fluoressensweitenisenge

nung der Fluoreszensuslieniaenge */

21

schleste

/* DDE 1411411

ŝ

2 5

lf (paramotor_geenis) Marint[(starr,'telan pa (sulf)

•=={{{1}}

(C_quelltert)

(veid) fclom

integrand_theta= (double) 0.0;

Thetaschies

r (1_theta = 1; 1_theta = theta = theta_start=(1_t) integrand_theta = integra

 $\mathbf{\hat{f}}$

1

Ortechietre

c (anreg_ort = anreg_start; + anreg_schritt] { n_srtee;

ş

....

ÌÌÌ

Normate rung

ă

BCK Thetaschlerte:

evenent, normaterung = N_LANBOA ° N_PHI ° integrand_ the ta integrand_lambda ∘ integrand_lambda / summen_normaterun

Licht

ł

Beg i.m

blel0.0;

De So

des Lichte

į

÷.

********** 1013

caee 2: (void) [print[(out_file, "45.1][\thll.5e\n".anreg_ort.integrand_]ambda]; house:	(double ergebrig;
de fault :	double b_deck=(double) FROBENER_VENT;
fprintf(stderr,"ich habe kanne zuverlaessigs Angabe usber die "); fprintf(stderr,"ART_DEX_Ausonart in %, N". Excendre verriet.	e rgebnis=pow(RidTDBrK,floor(#*tan(cheta) *fabe(-sin(phi))/b_deck+0.5)):
break;	return (ergebnis);
	/ _ + + + + + + + + + + + + + + + + + +
/* DOE Ortechleife: Aanderung des Anregungsortes */	+ Derretaiung des Kerntermes zur Lichtabschwischung im Quader .
(void) felome(out_file)	double i_ksrn(double theta, double phi, double x, double mus)
return (0);	double srgstmin;
	ergebnistist_esit(thets, phi., x)*f_deck(thets.phi.x)*erp(-mue*x/cos(thets));
***************************************	retutt (ergebnie);
	 Arrentante de la construction de la co
γ^{0} - control con	double r_freamel(double n_brech, double alpha) {
/ ************************************	double wurzel, tho_p, tho_e, refl, n_reletiv;
int read_ima_uratile(double *imabda.double *aue.double *i_fiuo) Fill *i_mue_vecfile: Fill *i_mue_vecfile:	La relative///_Deech. 1. mai - Territorianis, j. povinin(al phai.)]). 11 a. mai - Martin, statik, j. povinin(al phai.)]). 11 a. mai - Martin, statik, j. constatika, j. 20,0000 (n. (*14 statik, j. 1.)).
<pre>if((i_mus_vectile = fopen(VECTILE_I_MUL_'F') == NULL) (/* Dates futach */</pre>	(pow(n_reletiv,2)*cos(alpha) + wurzel); refl = 0.5*(pow(zho_s,2)+pow(zho_p,2));
	recurb(ref) ;
<pre>else (/* 2.12e or / /</pre>	 Merchange de an dr. Nallenseit autrustand. Investigation Retchard Burk de Inder Autorente autrustand.
	double refi_korrektur(double thete. double phi, double mue)
(void) folose(i_mue_vecfile); return(0);	double srgetmise0.0;
 Benetitiung der Sattemandgesamrechlativitiset aus phi. theta und z . 	ervelmis = 1 / 1 + pow(i_kern(theta.phi.phoson.o.mus).2) - "KETL_ANF"KETL_DUDE);
	return (ergebnis);)
Counce (/*************************************
double ergebraie: double b_meite(double)FRC8DHM_HCAI;	Einde der Unterprogramme und Funktionen
eryebris = pow(RETL_EELT, floor (#*tan (theta) "fabs (cos (phi)) /b_eart+0.5)] ;	× 4 4 5 5 1 8 6 4 5 7 6 6 4 6 5 6 6 6 5 6 6 6 5 5 6 6 6 6 5 5 6 6 6 6 6 6 6 6 6 6 6 6 6 7 5 6 7 5 6 7 5 7 5
return (ergebnis), 	
/*************************************	
double f_deck(double thets, double phi, double x)	



Tabelle A.1: Basisdaten von Y7 Wellenlängenschiebermaterial (30 ppm Y7 und 360 nm UV. Absorber in PMMA Basis) für das Simulationsprogramm "quaderatten": Wellenlänge λ , geo- metriebefreiter Absorptionskoeffizient μ_0 , Fluoreszenzintensitäten für idealen Detektor I _{0,ideal} (relativ zum Maximum bei 502 nm) und bezogen auf realen Bialkaliphotomultiplier (Typ Valvo
XP2011) I _{0,real} .

, X	μο	I _{O,ideal}	I _{O,real}		λ	μο	I _{0,ideal}	I _{O,real}
(nm)	(cm-1)				(nm)	(cm ⁻¹)		-
426,0	3,72E + 00	0,003	0,004	•	520.0	4.71E - 03	0 729	0.545
428,0	3,93E + 00	0,003	0,004		522.0	4.37E - 03	0 678	0.496
430,0	4,14E + 00	0,004	0.005		524.0	4.13E - 03	0.625	344.0
432,0	4,31E + 00	0,004	0,005		526.0	3.95E - 03	0.583	0 406
434,0	4,42E + 00	0,005	0,006		528.0	3.80E - 03	0.545	0 371
436,0	4,48E + 00	0,007	0,009		530,0	3.66E - 03	0.505	0.335
438,0	4,47E + 00	0,010	0,012		532,0	3.53E - 03	0.477	0.308
440,0	4,42E + 00	0,013	0,016		534.0	3.45E - 03	0.452	0.285
442,0	4,34E + 00	0,021	0,026		536.0	3.38E - 03	0.426	0.261
444,0	4,27E + 00	0,033	0,040		538.0	3.32E - 03	0.408	0.243
446,0	4,20 <i>E</i> + 00	0,044	0,053		540,0	3.29E - 03	0.393	0.227
448,0	4,18 <i>E</i> + 00	0,069	0,083		542,0	3,26E - 03	0.376	0.211
450,0	4,18 <i>E</i> + 00	0,100	0,119		544,0	3,23E - 03	0.361	0.197
452,0	4,22 <i>E</i> + 00	0,132	0,156		546,0	3.18E - 03	0.347	0.184
454,0	4,28 <i>E</i> + 00	0,184	0,216		548,0	3.13E - 03	0.331	0.170
456,0	4,32E + 00	0,245	0,287		550,0	3,07E - 03	0.317	0.158
458,0	4,34E + 00	0,308	0,357		552,0	3,05E - 03	0,303	0.146
460,0	4,32E + 00	0,383	0,441		554,0	2,98E - 03	0,288	0.134
462,0	4,20E + 00	0,465	0,531		556,0	2,89E - 03	0.274	0.123
464,0	4,02E + 00	0,549	0,622		558,0	2,85E - 03	0,261	0.113
466,0	3,78E + 00	0,627	0,704		560,0	2,83E - 03	0,245	0,103
468,0	3,49 <i>E</i> + 00	0,705	0,784		562,0	2,82E - 03	0,232	0,094
470,0	3,09 <i>E</i> + 00	0,784	0,863		564,0	2,76E - 03	0,220	0,086
472,0	2,63 <i>E</i> + 00	0,838	0,914		566,0	2,78E - 03	0,206	0,077
474,0	2,21 <i>E</i> + 00	0,882	0,953		568,0	2,80 <i>E -</i> 03	0,195	0,070
476,0	1,82E + 00	0,928	0,992		570,0	2,76E - 03	0,185	0,064
478,0	1,55E + 00	0,946	1,000		572,0	2,64 <i>E</i> 03	0,175	0,058
480,0	1,22E + 00	0,953	0,995		574,0	2,50E - 03	0,166	0,053
482,0	9,17 <i>E –</i> 01	0,960	0,990		576,0	2,47 <i>E –</i> 03	0,158	0,049
484,0	6,87E - 01	0,958	0,977		578,0	2,42E - 03	0,149	0,044
486,0	5,11E - 01	0,953	0,959		580,0	2,39 <i>E –</i> 03	0,142	0,040
488,0	3,72E - 01	0,948	0,942		582,0	2,49E - 03	0,135	0,037
490,0	2,62 <i>E</i> - 01	0,951	0,932		584,0	2,54 <i>E</i> 03	0,128	0,033
492,0	1,85E - 01	0,957	0,925		586,0	2,60E - 03	0,122	0,030
494,0	1,32 <i>E</i> 01	0,965	0,918		588,0	2,74 <i>E -</i> 03	0,116	0,027
496,0	8,78 <i>E</i> – 02	0,975	0,914		590,0	2,62 <i>E –</i> 03	0,116	0,026
498,0	6,47E - 02	0,986	0,910		592,0	2,47 <i>E –</i> 03	0,104	0,023
500,0	4,31E - 02	0,998	0,906		594,0	2,55 <i>E –</i> 03	0,098	0,020
502,0	2,53E - 02	1,000	0,893		596,0	2,80E - 03	0,092	0,018
504,0	1,92E - 02	0,997	0,875		598,0	3,03E - 03	0,087	0,016
506,0	1, 48 <i>E</i> - 02	0,994	0,857		600,0	2,88 <i>E</i> - 03	0,081	0,014
508,0	1,15 <i>E</i> – 02	0,975	0,825		602,0	2,92 <i>E –</i> 03	0,075	0,013
510,0	9,36 <i>E</i> 03	0,948	0,787		604,0	3,08 <i>E</i> 03	0,070	0,011
512,0	7,84E - 03	0,920	0,748		606,0	3,36E - 03	0,065	0,010
514,0	6,67 <i>E</i> – 03	0,878	0,701		608,0	3,61 <i>E -</i> 03	0,059	0,009
516,0	5,85 <i>E</i> – 03	0,830	0,648		610,0	3,84 <i>E</i> 03	0,055	0,007
518,0	5,22 <i>E -</i> - 03	0,778	0,595					

142

λ (nm)	^μ 0,1±Gy (cm ⁻¹)	μ1 kGy (cm ⁻¹)	#10 kGy (cm ⁻¹)	لا (ππ)	μο,1 kGy (cm ⁻¹)	μ₂ kGy (cm ^{−1})	#10kGy (cm ⁻¹)
426,0	3,72E + 00	3,72E + 00	3,77E + 00	520.0	4.76E - 03	5.20E - 03	9.58E - 03
428,0	3,94 <i>E</i> + 00	3,94 <i>E</i> + 00	3,99E + 00	522,0	4.42E - 03	4.84E - 03	9.13E - 03
430,0	4,14 <i>E</i> + 00	4,14 <i>E</i> + 00	4,19E + 00	524,0	4.18E - 03	4.60E - 03	8.79E - 03
432,0	4,31E+00	4,31 <i>E</i> + 00	4,36E + 00	526,0	4,00E - 03	4.41E - 03	8.47E - 03
434,0	4,42E + 00	4,43 <i>E</i> + 00	4,47E + 00	528,0	3.84E - 03	4.24E - 03	8.16E - 03
436,0	4,48E+00	4,48 <i>E</i> + 00	4,52E + 00	530,0	3,70E - 03	4.09E - 03	7.94E = 0.3
438,0	4,47E+00	4,48 <i>E</i> + 00	4,51E + 00	532.0	3.57E - 03	3.96E - 03	7.84E - 03
440,0	4,42 <i>E</i> + 00	4,43 <i>E</i> + 00	4,46E + 00	534.0	3.49E - 03	3.87E - 03	7.70E = 03
442,0	4,34 <i>E</i> + 00	4,35 E + 00	4,38E + 00	536,0	3.42E - 03	3.80E - 03	7.57E = 03
444,0	4,27 <i>E</i> + 00	4,27 <i>E</i> + 00	4,30E + 00	538,0	3.36E - 03	3.74E - 03	7.48E - 03
446,0	4,20 <i>E</i> + 00	4,21 <i>E</i> + 00	4,24 <i>E</i> + 00	540,0	3,33E - 03	3.69E - 03	7.33E = 03
448,0	4,18 <i>E</i> + 00	4,19 <i>E</i> + 00	4,21 <i>E</i> + 00	542,0	3,30 <i>E</i> - 03	3.66E - 03	7.21E - 03
450,0	4,18 <i>E</i> + 00	4,19 <i>E</i> + 00	4,22E + 00	544,0	3.27E - 03	3.63E - 03	7.20E - 03
452,0	4,22 <i>E</i> + 00	4,22 <i>E</i> + 00	4,25 <i>E</i> + 00	546,0	3.22E - 03	3.57E - 03	7.10E - 03
454,0	4,28 <i>E</i> + 00	4,28 <i>E</i> + 00	4,30 <i>E</i> + 00	548,0	3.16 <i>E</i> - 03	3,51E - 03	6.99E - 03
456,0	4, 32<i>E</i> + 0 0	4,33 <i>E</i> + 00	4,35 <i>E</i> + 00	550,0	3.11E - 03	3.46E - 03	6.89E - 03
458,0	4,35 <i>E</i> + 00	4,35 <i>E</i> + 00	4,36 <i>E</i> + 00	552,0	3.09E - 03	3,42E - 03	6.72E - 03
460,0	4,31 <i>E</i> + 00	4,32E + 00	4,33E + 00	554,0	3,01 <i>E</i> - 03	3,34E - 03	6.55E - 03
462,0	4,20E + 00	4,20 <i>E</i> + 00	4,22E + 00	556,0	2,93E - 03	3,25E - 03	6,46E - 03
464,0	4,02 <i>E</i> + 00	4,02 <i>E</i> + 00	4,03 <i>E</i> + 00	558,0	2,89E - 03	3,20E - 03	6,34 <i>E</i> 03
466,0	3,78E + 00	3,78 <i>E</i> + 00	3,79 <i>E</i> + 00	560,0	2,87 <i>E -</i> 03	3,18 <i>E</i> - 03	6.27E - 03
468,0	3,49 <i>E</i> + 00	3,49 <i>E</i> + 00	3,50E + 00	562,0	2,85E - 03	3,16E - 03	6,26E - 03
470,0	3,09E + 00	3,09E + 00	3,09 <i>E</i> + 00	564,0	2,80E - 03	3,10E - 03	6,14E - 03
472,0	2,63E + 00	2,63E + 00	2,63E + 00	566,0	2,81E - 03	3,11E - 03	6,07E - 03
474,0	2,21E + 00	2,21E + 00	2,21E + 00	\$68,0	2,84 <i>E</i> 03	3,12E - 03	5,99 <i>E</i> 03
476,0	1,82E + 00	1,82E + 00	1,83E + 00	570,0	2,80E - 03	3,08 <i>E -</i> 03	5,91E - 03
478,0	1,55E + 00	1,56E + 00	1,56E + 00	572,0	2,67 <i>E –</i> 03	2,94 <i>E</i> 03	5,71 <i>E</i> - 03
480,0	1,225 + 00	1,22E + 00	1,23E + 00	574,0	2,53E - 03	2,80 <i>E -</i> 03	5,48 <i>E -</i> 03
494.0	9,17E = 01	9,185 - 01	9,28E - 01	576,0	2,50E - 03	2,76 <i>E –</i> 03	5,42E - 03
101,0	6,87 <i>E</i> - 01	6,88E = 01	7,00E = 01	578.0	2,45E - 03	2,70 <i>E</i> – 03	5,26E - 03
498.0	3,115 01	5,12 <i>E</i> - 01	5,23E = 01	580,0	2,42E - 03	2,66E - 03	5,06E - 03
400.0	3,725 - 01	3,738 - 01	3,83 <i>E</i> - 01	582,0	2,51E - 03	2,76 <i>E</i> - 03	5,21 <i>E</i> – 03
492.0	2,028 - 01	2,036 - 01	2,705 - 01	584,U	2,57E = 03	2,81E - 03	5,20E - 03
494.0	1,035 - 01	1,60.0 01	1,972 - 01	0,06C	2,62E = 03	2,84 <i>E</i> - 03	4,97 <i>E</i> - 03
496.0	1,35D = 01	1,335 - 01	1,425 - 01	388,U	2,76E = 03	3,00 <i>E</i> - 03	5,37E = 03
498.0	6.47E = 02	6,61 D = 02	5,00E - 02	590,0 502.0	2,032 - 03	2,90E = 03	5,36E - 03
500 0	4 328 - 02	4 18 F _ 02	5.028 - 02	592,0	2,495 - 03	2,69E = 03	4,71E - 03
502.0	2.54E - 02	3,000 - 02	3,02B = 02 3,21P = 02	551,0	2,316 - 03	2,738 - 03	4,30 <i>E</i> = 03
504.0	193E = 02	1.00 5 - 02	3,216 - V2	590,U	2,826 - 03	2,94 <i>E</i> - 03	4,16E - 03
506.0	1498-02	1,362 - 02 1.54E - 02	2,005 - 02	090,0 600.0	3,0425 — 03 2 #015 - 03	3,16E = 03	4,37 <i>E</i> - 03
508.0	1.15E - 02	120E - 02	174R = 02	6020	2,0910 - UJ 20317 - 00	4,9915 - U3	+,05 <i>E</i> = 03
510.0	9.41E = 02	9 97 E - 01	1.50E = 02	604.0	2,335 - 03	$3_102E = 03$	3,87 <i>E</i> - 03
512.0	7.90E - 03	\$ 39E - 03	1.33E = 02	606.0	3,095 - U3 3,37 F - 03	3,105 - 03	3,89E - 03
514.0	6.72E = 03	720E - 01	120E = 02	608.0	3,312 - 03	3,725 - 03	3,91E = 03
516,0	5.90E - 03	6.37E - 03	1.10E - 02	610.0	3848 - 03	3,032 - UJ 3 842 - 04	3,81E - U3
518,0	5,27E - 03	5,72E - 03	1.02E - 02	,.	-,	0,01D - 03	9,19E - 03

Tabelle A.3: Basisdaten von SCSN-38 Szintillatormaterial für das Simulationsprogramm "quaderatten": Wellenlänge λ , geometriebefreiter Absorptionskoeffizient μ_0 , Fluoreszenzintensitäten für idealen Detektor I_{0,ideal} (relativ zum Maximum bei 406 nm) und bezogen auf dirAbsorption des Wellenlängenschieberfarbstoffs Y7 I_{0,Y7}.

					_			
, x	μo	I _{O,ideal}	I _{O,real}		λ	μο	Inideal	Interest
(nm)	(cm-')			(nm)	(cm⁺t)		
352,0	2,40E + 01	0,704	0.045	4	52.0	6.89E - 03	0.390	0.570
354,0	2,45E + 01	0,717	0.039	4	54.0	6.58E = 03	0,030	0,570
356,0	2,72E + 01	0,762	0.037	4	56.0	6 15 E = 03	0.358	0,001
358,0	2,37E + 01	0.820	0.040	4	58.0	5,83E = 03	0,000	0,536
360,0	2,56E + 01	0.879	0.037	4	60 0	5.61E - 03	0,042	0,020
362,0	2,51E + 01	0,924	0.042	4	62.0	5.46E = 03	0,020	0,133
364,0	2,55E + 01	0.942	0.045	4	64 0	5,20E = 03	0,000	0,111
366,0	2.55E + 01	0.942	0.051	4	66 0	4.96E = 03	0,203	0,102
368,0	2,46E + 01	0.910	0.059	1	68 O	4.76E = 03	0,200	0.361
370,0	2,44 <i>E</i> + 01	0.870	0.066	4	70 0	4.68E - 03	0,217	0,301
372,0	2,42E + 01	0.828	0.081	4	72.0	4.52E = 03	0,227	0,317
374,0	2,43E + 01	0.795	0.097	. i	74 በ	4.39E = 03	0,200	0,272
376,0	2,37E + 01	0,778	0.117	4	76 D	436E = 03	0,105	0,220
378,0	2.20E + 01	0.770	0.143	4	78.0	4.95E = 03	0,273	0,109
380,0	2.06E + 01	0.772	0.174	4	80 N	4.15E = 03	0,136	0.116
382,0	1.92E + 01	0.776	0,210	. Al	87 N	4.09E = 03	0,140	0,110
384,0	1.72E + 01	0.780	0.248	41	84 A	3,0315 - 03	0,130	0,087
386.0	1.52E + 01	0 783	0 282	4	86 D	3,33E = 03 3,93E = 03	0,127	0,004
388,0	1.34E + 01	0.785	0.319	41	88 N	3.94E = 03	0,118	0,010
390,0	1.15E + 01	0.790	0.354	40	20,0	3985-03	0,111	0,033
392.0	9.61E + 00	0.801	0.398	40	12,0	3,95 E - 03	0,103	0,023
394.0	7.90E + 00	0.822	0 442	40	34.0	3,89 <i>F</i> - 03	0,039	0,015
396,0	6.43E + 00	0.849	0.491	40	26,0	3,77E = 03	0,093	0,010
398,0	5,16E + 00	0.886	0.555	49	1.86	3.69E = 03	0,001	0,007
400,0	3,87E + 00	0.925	0.626	50	0.0	3.62E = 03	0,001	0,003
402,0	2,82E + 00	0.962	0.703	50	20	3,50E = 03	0,070	0,003
404,0	1,99E + 00	0.991	0.776	50	14 N	3,57E = 03	0,011	0,002
406,0	1,38E + 00	1,000	0.832	50	6.0	3.66E - 03	0,000	0,001
408,0	9,10 <i>E</i> 01	0,996	0.877	50	8.0	3,75E = 03	0.056	0,001
410,0	5,55E - 01	0,970	0.897	51	0.0	3.53E - 03	0,000	0,001
412,0	3,39E - 01	0,934	0.902	51	2.0	3.65E = 03	0.047	0,001
414,0	1,96 <i>E -</i> 01	0,893	0,895	51	4.0	4.00E - 03	0.043	0,000
416,0	1,22E - 01	0,854	0,884	51	6.0	3.83E - 03	0.039	0,000
418,0	7,49 <i>E -</i> 02	0,825	0,884	51	8.0	3.72E - 0.3	0.035	0,000
420,0	3,95 <i>E -</i> 02	0,804	0,886	52	0.0	3.85E - 03	0.032	0,000
422,0	2,89E - 02	0,795	0,911	52	2.0	3.80E - 03	0.029	0,000
424,0	2,35 <i>E –</i> 02	0,788	0,938	52	4.0	3.79E - 03	0.026	0,000
426,0	1,98E - 02	0,782	0,966	52	6.0	3.82E - 03	0.023	0 000
428,0	1,70 <i>E</i> – 02	0,773	0,988	52	8.0	3.80E - 03	0,020	0,000
430,0	1,51 <i>E ~</i> 02	0,756	1,000	53	0.0	3.80E - 03	0.018	0,000
432,0	1,37E - 02	0,733	1,000	53	2.0	3.81E - 03	0.016	0,000
434,0	1,25 <i>E</i> 02	0,699	0,976	534	4.0	3.80E - 03	0.015	0,000
436,0	1,15 <i>E –</i> 02	0,659	0,933	530	5,0	3,81 <i>E</i> - 03	0.013	0.000
438,0	1,07 <i>E</i> – 02	0,615	0,880	53(8.0	3.81 E ~ 03	0.012	0,000
440,0	9,95 <i>E</i> 03	0,572	0,821	540	0,0	3.81E - 03	0.010	0.000
442,0	9,27 <i>E</i> – 03	0,530	0,762	542	2.0	3.81 E - 03	0.009	0,000
444,0	8,71 <i>E</i> - 03	0,490	0,704	544	1,0	3.81E - 03	0.008	0,000
446,0	8,16 <i>E –</i> 03	0,456	0,655	546	5.0	3.81 E - 03	0.007	0,000
448,0	7,63 <i>E –</i> 03	0,430	0,618	548	0	3,81 <i>E</i> - 03	0.006	0,000
450,0	7,17 <i>E -</i> 03	0,407	0,590	550	0,0	3,81 <i>E</i> - 03	0,005	0.000

ANHANG A. ERGÄNZUNGEN

146

ANHANG A. ERGÄNZUNGEN

Tabelle A.4: Weitere Basisdaten von bestrahltem SCSN-38 im Endschadenszustand nach Ausheilen in Luft für "quaderatten": Wellenlänge λ , geometriebefreite Absorptionskoeffizienten $\mu_{0,1kGr}$, μ_{1kGr} und μ_{10kGr} für Strahlungsdosen von etwa 0,1 kGy, 1 kGy und 10 kGy.

·							
λ	PalkGr	Pika v	HighGr	λ	HA120-	411-0-	Hanker-
(nm)	(cm ⁻¹)	(cm ⁻¹)	(cm ⁻¹)	(nm)	(cm - 1)	(cm ⁻¹)	(cm ⁻¹)
			(/		(****)	((cm /
352,0	2,40E + 01	2,40E + 01	2,34E + 01	452,0	6,97 <i>E -</i> 03	7,71E - 03	1,51 <i>E -</i> 02
354,0	2,45 <i>E</i> + 01	2,44 <i>E</i> + 01	2,39 <i>E</i> + 01	454,0	6,66 <i>E -</i> 03	7, 38 <i>E</i> – 03	1,46 <i>E</i> 02
356,0	2,72E + 01	2,72E + 01	2,66 <i>E</i> + 01	456,0	6,23 <i>E -</i> 03	6,95 <i>E -</i> 03	1,41 <i>E</i> - 02
358,0	2,37E+01	2,36E + 01	2,31E+01	458,0	5,91 <i>E -</i> 03	6,60E - 03	1,35E - 02
360,0	2,56E + 01	2,55 <i>E</i> + 01	2,50E + 01	460,0	5,68E - 03	6.34E - 03	1.29E - 02
362,0	2,51E + 01	2,50E + 01	2,45E + 01	462.0	5.53E - 03	6.16E - 03	1.25E - 02
364,0	2,55E + 01	2,55E + 01	2.50E + 01	464.0	5.27E - 03	5.90E - 03	1.22E = 0.2
366,0	2.55E + 01	2.54E + 01	2.49E + 01	466.0	5.03E - 03	5.64E - 03	118E - 02
368,0	2,45E + 01	2.45E + 01	2.40E + 01	468.0	4.83E - 03	5.42E - 03	1.14E = 02
370,0	2,44E + 01	2.43E + 01	2.38E + 01	470.0	4.74E - 03	5.33E - 03	117E = 02
372,0	2,42E + 01	2.41E + 01	2.36E + 01	472.0	4.59E - 03	516E - 03	1,09E = 02
374.0	2.43E + 01	2.43E + 01	$2.38E \pm 01$	474.0	4 45 8 - 03	5018-03	1,00E = 02
376.0	2.37E + 01	2.37E + 01	$2.32E \pm 01$	476.0	4 42E - 03	4 97E - 01	1,00D = 02
378.0	2.20E + 01	$2.20E \pm 01$	$2.14E \pm 01$	478.0	4.30E - 03	4,512 - 05 4 84 F - 03	1,042 - 02
380.0	2.06E + 01	2.05E + 01	$1.98E \pm 01$	480.0	4 21 F = 03	4,04D - 03	1,012 - 02
382.0	1.92E + 01	$1.91E \pm 0.1$	$1.84E \pm 01$	482.0	4,15E = 03	4,120 - 03	9,092 - 03
384.0	1.72E + 01	$1.71E \pm 0.1$	$1.64E \pm 01$	484.0	4.03E - 03	4,002 - 03	9,10B - 03
386.0	1.52E + 01	$1.51E \pm 01$	1458 + 01	486.0	1,00D - 00	4.46 - 03	5,175 - 03 0.00E 00
388.0	1.34E + 01	1.33E + 01	$1.27E \pm 01$	488.0	199 <i>F</i> - 01	445 E 03	9,235 - 03
390.0	1.15E + 01	1.14E + 01	$1,09E \pm 01$	490.0	3,33E = 03	447 E 03	9,00 <i>E</i> - 03
392.0	9.60E + 00	$9.56E \pm 00$	9 12 E + 00	4020	4,00E = 03	4,475 - 03	8,08 <i>L</i> - U3
394.0	$7.90E \pm 00$	$7.86E \pm 00$	7,50 E ± 00	492,0	1,002 - 03	1,110 - UJ	8,765 - 03
396.0	$6.43E \pm 00$	640E±00	6 12E ± 00	406.0	3,332 - 03	4,302 - 03	0,04 <i>E</i> - 03
398.0	$516E \pm 00$	5148 ± 00	0,12D + 00	409.0	3,825 - 03	4,242 - 03	8,472 - 03
400.0	3.87E + 00	3 85E ± 00	3.69 5 1 00	100,0 500 D	3,145 - 03	4,136 - 03	8,31 <u>6</u> - 03
402.0	$2.82E \pm 00$	$2.81E \pm 0.0$	270 5 + 00	500,0	3,002 - 03	1,075 - 03	8,115 - 03
404.0	$1.98E \pm 00$	$1.98E \pm 00$	$1.92E \pm 0.0$	504.0	3,30D = 03	3,90 E = 03	8,116 - US
406.0	1.38E + 00	$1.38E \pm 00$	$1.34E \pm 0.0$	506.0	3 70 5 - 03	4,015 - 03	6,035 - 03
408.0	9.11E - 01	9.12E - 01	9.22E - 01	508.0	3.60 E - 03	4.18.57.02	8,0015 - 03
410.0	5.55E - 01	5.57E = 01	5,71E = 01	510.0	3,6015 - 03	1,186 ~ U3	8,03£ - 03
412.0	3.40E - 01	3.41E = 01	3 59 E - 01	5120	160E 07	J, 5515 - 03	6,12D = 03
414.0	1.96E - 01	1.98E - 01	2,000 = 01 2.17E = 01	514.0	4.03E = 03	1,08 <u>2</u> - 03	7.50 - 03
416.0	1.22E - 01	1.245 - 01	$1_{A2E} = 01$	516.0	1,03 <i>D</i> - 03	1,305 - 03	7,086 ~ 03
418.0	7.51E - 02	7.69E - 02	9.49E = 02	518.0	3,872 - 03 376 E 03	1,200 - 03	7,515 - 03
420.0	3.97E - 02	414E = 02	5 88 2 - 02	520.0	3,105 - 03	1,09E - 03	7,392 - 03
422.0	2.91E - 02	3078 - 02	4 69 E - 02	520,0	3,835 - 03 1845 - 03	4,228 - 03	7,325 - 03
424.0	2.36E - 02	252E - 02	4.05 E - 02	524.0	3,015 - 03	4,172 - 03	7,9725-03
426.0	1.99E - 02	2.14E = 02	3.54E = 02	526.0	3,65 - 03	4,102 - 03	7,402 - 03
428.0	1.72E - 02	1.85E - 02	3 20 8 - 02	528.0	3,65 <u>D</u> - 03	4,162 - 03	7,195 - 03
430,0	1.52E - 02	1.65E - 02	2.94E - 02	530.0	3,64E - 03	4,17E = 03	7,185 - U3
432,0	1,38 <i>E</i> - 02	1.50E - 02	2.69E - 02	532.0	3.84E - 03	4,175-03	7.48 2 .03
434,0	1.27 <i>E</i> - 02	1.38E - 02	2,52E - 02	534.0	3848-03	4,17E = 03	7,10 D - U3
436,0	1.16E - 02	1.27E = 02	2.32E = 02	536.0	3.84E - 03	4178 03	7,465 - 03
438,0	1,08E - 02	1.18E - 02	2.17E - 02	538.0	3848 - 03	4178 - 03	7,385-03
440,0	1,01E - 02	1.10E - 02	2.05E - 02	540.0	3.84E = 03	4,17E = 03	7,48 2 03
442,0	9,37E - 03	1,03 <i>E</i> - 02	1.92E - 02	542.0	3.64E = 03	4 17 E - 03	7418 03
444,0	8,80E - 03	9,65E - 03	1.81E - 02	544.0	3.84E - 03	417E = 03	7 44 8 - 03
446,0	8,25 <i>E</i> - 03	9,07E - 03	1,73E - 02	546.D	3.84E - 03	4.17E - 03	7488 - 03
448,0	7,72 <i>E -</i> 03	8,52 <i>E</i> - 03	1,65E - 02	548.0	3.84E - 03	4.17E - 03	7488 - 03
450,0	7,25 <i>E -</i> 03	8,02 <i>E</i> - 03	1,57 <i>E –</i> 02	550,0	3,84 <i>E</i> - 03	4,17E - 03	7.48E - 03
					•		

A.4 Bestimmung der Apparatefunktionen

Zur Normierung von Fluoreszenzspektren ist die Kenntnis der spektralen Empfindlichkeit der verwendeten Apparatur notwendig (vergl. Abschnitt 4.5). Um Apparatefunktionen für bei den Messungen benutzten Aufbauten zu gewinnen, können Wolframlampen, deren spektrale Verteilung theoretisch berechenbar ist, eingesetzt werden.

Wird bei bekannter Farbtemperatur die spektrale Intensitätsverteilung einer Wolframlampe mit der zu normierenden Apparatur aufgenommen, so liefert der Vergleich mit der theoretischen Spektralverteilung einer Wolframlichtquelle die Apparatefunktion. In der Literatur [CRC] finden sich dazu tabellierte Wolfram-Emissivitäten $\epsilon(\lambda, T)$, die zusammen mit dem Spektrum des schwarzen Strahlers eine Berechnung der spektralen Intensitätsverteilung von Wolframlichtquellen erlauben.

Tabelle A.5 listet die Wolframemissivitäten für verschiedene Farbtemperaturen auf [CRC].

Tabelle A.5: Wolframemissivitäten für verschiedene Farbtemperaturen, nach [CRC]

Temperatur (K)			i)					
	250	300	350	400	500	600	700	800
1600	.448*	.482	.478	.481	.469	455	.444	.431
1800	.442*	.478*	.476	.477	.465	.452	.440	.425
2000	.436*	.474	.473	.474	.462	448	.436	.419
2200	.429*	.470	.470	.471	.458	.445	.431	.415
2400	.422	.465	.466	468	.455	.441	.427	408
2600	.418	.461	.464	.464	.451	437	.423	.404
2800	.411	.456	.461	.461	.448	.434	.419	400

* Diese Werte wurden durch Extrapolation gewonnen.

Die Beschreibung der spektralen Intensitätsverteilung $I_S(\lambda, T)$ durch einen Hohlraumstrahler der Temperatur T lautet nach dem Planckschen Gesetz:

$$I_{S}(\lambda,T) = \frac{2hc^{2}}{\lambda^{5}} \cdot \left(e^{\frac{Ac}{k\lambda T}} - 1\right)^{-1}; \qquad (A.14)$$
mit

 λ : Wellenlänge,

T : Temperatur in K.

 $h = 6,6262 \cdot 10^{-34}$ Js (Plancksches Wirkungsquantum),

 $c = 2,9979 \cdot 10^8$ m/s (Lichtgeschwindigkeit im Vakuum).

 $k = 1,3807 \cdot 10^{-7} \text{ J/K} (\text{Boltzmannkonstante}).$

Hiermit läßt sich das Emissionspektrum einer idealen Wolframlampe $I_{W,id}(\lambda, T)$ berechnen:

$$I_{W,id}(\lambda, T) = I_{S}(\lambda, T) \cdot \epsilon(\lambda, T);$$
mit
$$\epsilon(\lambda, T) : Wolfram-Emissivität.$$
(A.15)

Die spektrale Empfindlichkeit der Apparatur $A(\lambda)$, Apparatefunktion genannt, ergibt sich aus dem Quotienten der Spektren der gemessenen Wolfram-Intensität und der berechneten Wolfram-Intensität bei gleicher Farbtemperatur T:

$$A(\lambda) = \frac{I_{W,g}(\lambda, T)}{I_{W,id}(\lambda, T)};$$
(A.16)
mit

 $I_{W,g}(\lambda, T)$: Wolframlampenspektrum, gemessen.

Mit Division irgendeines gemessenen Spektrums durch die Apparatefunktion können nun normierte Spektren gewonnen werden.

Für die Eichung der benutzten Apparaturen wurde eine Wolframbandlampe der Firma Osram verwendet, deren Farbtemperatur mit Hilfe eines Zweifarbpyrometers (Leybold-Heraeus Pyrometer QP31) während der Eichmessungen zu 2330 K bestimmt werden konnte ¹.

Das hier beschriebene Verfahren ermöglicht die Bestimmung von Korrekturen strenggenommen nur für diskrete Wellenlängen, an denen z.B. die Wolfram-Emissivitäten vorliegen, oder die mit dem Monochromator bei der Eichmessung aufgenommen wurden. An zwischenliegenden Punkten müßte interpoliert werden.

Um das Verfahren für die Vielzahl von auszuwertenden Spektren abzukürzen und einen flexiblen Einsatz der gewonnenen Apparatefunktionen zu ermöglichen, wurden alle diskreten Korrekturpunkte mit Summenfunktionen aus Gaußkurven angepaßt. Die so erhaltenen Funktionen stimmen im Rahmen der Fehlergrenzen gut mit den "echten" Umrechnungspunkten überein und interpolieren diese. Dabei sind die gewonnenen Funktionen empirisch angepaßt und beinhalten somit keinerlei physikalische Aussage über zugrundeliegende Apparateeigenschaften. Von besonderem Nutzen sind die angepaßten Apparatefunktionen in Auswerteumgebungen, wie z.B. dem PAW-Programmpaket [Paw92]. Hier kann irgendein Fluoreszenzspektrum einfach mittels Division durch die entsprechende angepaßte Apparatefunktion korrigiert werden.

Tabelle A.6 zeigt die Parameter, mit denen nach Gleichung A.17 die empirisch angepaßten Apparatefunktionen $A(\lambda)$, gebildet werden können:

$$A(\lambda) = \sum_{i=1}^{n} a_{i} \cdot e^{-\frac{1}{2} \cdot \left(\frac{\lambda - k_{i}}{c_{i}}\right)^{2}}$$
(A.17)

Diese angepaßte Funktion geht für die spektrale Empfindlichkeit des Photomultipliers Valvo XP 2011 (sk. in Tabelle A.6) aus n=5 Summanden hervor, während sie für die drei anderen Apparatefunktionen (A... in Tabelle A.6) aus n=6 Summanden gebildet wird. Der Gültigkeitsbereich umfaßt Wellenlängen von 300 nm bis etwa 650 nm.

Tabelle A.6: Parameter für empirische Anpassungen nach Gleichung A.17; diese liefern die spektralen Empfindlichkeiten verschiedener Meßtischkomponenten.

Parameter	ske *	A_{L+M+X}	A _{M+X} '	AM+H 4
a 1	29,053	0,66798	0,23181	-4,4163
bı	334,41	463,29	366,37	590,50
c1	22,028	26,550	22,343	-0,13818
8.2	25,493	0,45312	0,31496	0,55396
b2	375,35	414,10	339,90	378,93
C2	24,018	9,7469	17 755	19.555
ā 3	65,729	0,37230	0,67805	0,15751
b3	428,79	401,90	397,34	536.10
C3	42,672	6,2747	36,522	62,811
84 -	11,886	-6326,3	0,60635	0.57790
b ₄	496,88	2721,6	462,81	345.12
¢4	25,609	57,626	34,972	-18,938
a 5	46,377	0,49982	0,30414	0.40108
b ₅	519,56	518,69	545,25	416.18
C5	59,730	45,084	35,397	25,985
2.6		0,48085	0,29491	0.64481
be		432,32	487,66	459,44
C6		15,549	40,484	49,330

 Liefert spektrale Empfindlichkeit des Photomultipliers XP 2011 in mA/W, nach [Val85]; Fehler hieraue: šak, = ± 5% · sk.

* Liefert spektrale Empfindlichkeit für Aufbau aus Mattacheibe, Lichtleiter, Monochromator und XP 2011 Photomultiplier; Fehler hieraus: $\delta A_{L+M+X} = \pm 0.05$.

^c Liefert spektrale Empfindlichkeit für Aufbau aus Monochromator und XP 2011 Photomultiplier; Fehler hieraus: $\delta A_{M+X} \pm \pm 0.05$.

⁴ Liefert spektrale Empfindlichkeit für Aufbau aus Monochromator und R 580 Photomultiplier; Fehler hieraus: $\delta A_{M+H} = \pm 0.05$.

e.c.d Resultierendes A(λ)... skaliert in Einheiten der Strahlungsdichte (α Wm⁻²sr⁻¹), normiert auf Maximalordinatenabschnitt = 1.

148

ANHANG A. ERGANZUNGEN

¹Freundliche Unterstützung bei den Eichmessungen und Bereitstellung der Geräte durch Herrn Dr. Stefan Kück, Institut für Laserphysik der Universität Hamburg

Anhang B

Fehlerrechnung

B.1 Spektralphotometer

Der in Gleichung 3.2 eingeführte Absorptionskoeffizient $\mu(\lambda)$ ist eine wichtige Größe zur Quantifizierung von strahlungsbedingten Materialveränderungen. Die Differenz $\Delta\mu(\lambda)$ (Gleichung 3.4) aus den Absorptionskoeffizienten vor und nach Bestrahlung dient als Maß der Schädigung. Zur Berechnung des Fehlers des Absorptionskoeffizienten $\delta\mu(\lambda)$ soll zunächst die Genauigkeit der Transmissionsmessung bewertet werden, auf der die $\mu(\lambda)$ -Berechnung beruht.

Die Genauigkeit der Transmissionsmessung setzt sich zusammen aus zwei Anteilen: dem statistischen Fehler δT_m in der Transmissionsmessung selbst, der durch Photomultipliereigenschaften, ADC-Genauigkeit usw. bestimmt wird und direkt angegeben werden kann, und einem weiteren Anteil $\delta T_\lambda(\lambda)$. Letzterer liegt begründet in der Genauigkeit $\delta \lambda$, der Wellenlängeneinstellung. Eine fehlerhafte Wellenlängenpositionierung liefert Transmissionswerte, die von der Transmission der eigentlich gewünschten Wellenlänge um so mehr abweichen, je stärker der lokale Transmissionsanstieg pro Wellenlängenintervall ist. $\delta T_\lambda(\lambda)$ variiert also mit der Wellenlänge.

Der Transmissionsanstieg an einem Meßpunkt λ_n kann aus den benachbarten Meßpunkten abgeschätzt und daraus der Transmissionsfehler errechnet werden. Bei äquidistanten Meßpunkten der Entfernung $\Delta \lambda = \lambda_{n+1} - \lambda_n$ sei

$$\delta T_{\lambda}(\lambda_n) = \frac{T(\lambda_{n+1}) - T(\lambda_{n-1})}{2 \cdot \Delta \lambda} \cdot \delta \lambda.$$
 (B.1)

Damit gilt für den Transmissionsfehler insgesamt:

$$\delta T(\lambda_n) = \sqrt{\delta T_m^2 + \left(\frac{T(\lambda_{n+1}) - T(\lambda_{n-1})}{2 \cdot \Delta \lambda} \cdot \delta \lambda\right)^2}.$$
 (B.2)

Dieses kann nun in die Fehlerberechnung für den Absorptionskoeffizienten einer Probe der Dicke d aus einer Transmissionsmessung

$$\mu(\lambda) = \frac{1}{d} \cdot ln \frac{T_0(\lambda)}{T(\lambda)}$$
(B.3)

einbezogen werden. Aus der Fortpflanzung der Fehler ergibt sich

$$\delta\mu(\lambda_n) = \sqrt{\left(\frac{\partial\mu}{\partial d}\delta d\right)^2 + \left(\frac{\partial\mu}{\partial T}\delta T\right)^2},$$

= $\sqrt{\left(\frac{\delta d}{d^2} \cdot \ln\frac{T_0(\lambda_n)}{T(\lambda_n)}\right)^2 + \left(\frac{\delta T(\lambda_n)}{d \cdot T(\lambda_n)}\right)^2}.$ (B.4)

Mit Gleichung B 2 wird daraus schließlich

$$\delta\mu(\lambda_n) = \frac{1}{d} \cdot \sqrt{\left(\frac{\delta d}{d} \cdot \ln \frac{T_0(\lambda_n)}{T(\lambda_n)}\right)^2 + \frac{\delta T_m^2 + \left(\frac{T(\lambda_{n+1}) - T(\lambda_{n-1})}{2 \cdot \Delta \lambda} \cdot \delta \lambda\right)^2}{T(\lambda_n)^2}}.$$
 (B.5)

Für $\Delta \mu(\lambda)$ (Gleichung 3.4) ist der Fehler durch weitere Fehlerfortpflanzung aus Gleichung B.5 einfach zu berechnen:

$$\delta \Delta \mu(\lambda_n) = \sqrt{\delta \mu_b(\lambda_n)^2 + \delta \mu_u(\lambda_n)^2}.$$
 (B.6)

Die Fehlergrößen am Spektralphotometer ACTAV wurden durch zahlreiche Messungen identischer Proben und bezüglich der Wellenlängenpräzision durch Messungen mit einer Quecksilberdampflampe ermittelt. Die Probendicken wurden mit einer Mikrometerschraube vermessen. Damit lassen sich die Fehler wie folgt angeben:

- Transmissionsmeßgenauigkeit $\delta T_m = \pm 0.15\%$ absolut,
- Wellenlängenfehler $\delta \lambda = \pm 0.2 \,\mathrm{nm}$,
- Fehler der Probendickenmessung $\delta d = \pm 0,005$ mm.

Beim UV 5270 wurden bei (nur möglicher) manueller Gerätebedienung etwas größere Fehler festgestellt:

- Transmissionsmeßgenauigkeit $\delta T_m = \pm (0, 2 \dots 0, 4)$ % absolut,
- Wellenlängenfehler $\delta \lambda = \pm 0.5 \,\mathrm{nm}$,
- Fehler der Probendickenmessung $\delta d = \pm 0,005 \,\mathrm{mm}$.

Literaturverzeichnis

- [Att86] Frank Herbert Attix, Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry, John Wiley & Sons, 1986.
- [Ber71] I. B. Berlman, Fluorescence Spectra of Aromatic Molecules, New York 1971, S. 130.
- [Bic90] B. Bicken, U. Holm, T. Marckmann, K. Wick, Short and Long Term Irradiations of Plastic Scintillators and Wave-Length Shifters, Proc. 5th Int. Conf on Instrumentation for Colliding Beam Physics, ed. E.P. Solodov, Novosibirsk, USSR, March 1990, pp. 348-354.
- [Bic91] B. Bicken, U. Holm, T. Marckmann, K. Wick, M. Rohde, Recovery and Permanent Radiation Damage of Plastic Scintillators at Different Dose Rates, IEEE Trans. Nucl. Sc., Vol. 38, No. 2, pp. 188-193, April 1991.
- [Bic92] B. Bicken, A. Dannemann, U. Holm, T. Neumann, K. Wick, Influence of Temperature Treatment on Radiation Stability of Plastic Scintillator and Wave-Length Shifter, IEEE Trans. Nucl. Sc. Vol.39, No.5, pp.1212-1216, October 1992.
- [Bos72] J. J. ten Bosch, W. F. Verhelst, K. H. Chadwick, Relation Between Free Radicals and Ultraviolet Absorption in Poly(Methyl/Methacrylat), Journal of Polymer Science, Part A-1, 10:1679-1685, 1972.
- [Bow79] T. N. Bowmer, L. K. Cowen, J. H. O'Donnel, D. J. Winzor, Degradation of Polystyrene by Gamma Irradiation: Effect of Air on the Radiation-Induced Changes in Mechanical and Molecular Properties, Journal of Applied Polymer Science, Vol.24, 425-439 (1979).
- [Bus92] W. Busjan, Diplomarbeit, Hamburg, 1992.
- [Bus93a] W. Busjan, A. Dannemann, U. Holm, T. Neumann, V. Schlottmann, K. Wick, Radiation Damage of Wave-Length Shifters, Nuclear Physics B (Proc. Suppl.) 32 (1993) 392-397.
- [Bus93b] W. Busjan, G. Buß, A. Dannemann, U. Holm, K. Wick, Dose Rate Investigations of Scintillator and Wavelength Shifter, Proc. 4th Int. Conf. on Calorimetry in High Energy Physics, ed. A. Mezione and A. Scribano, La Biodola, Italy, September 1993, pp.568-573.
- [Buß94] G. Buß, Diplomarbeit, Hamburg, 1994.
- [Bu695] G. Bu6, A. Dannemann, U. Holm, K. Wick, Radiation Damage by Neutrons to Plastic Scintillators, IEEE Trans. Nucl. Sc. Vol. 42, No. 4, pp.315-319, August 1995.

- [Cal95] L. Calcagno, R. Percolla, G. Foti, Ion track effects on gel formation of polystyrene, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 95 (1995) 59-64.
- [Clo88] R. Clough in Encyclopedia of Polymer Science and Engeneering, Vol. 13, 2. Auflage, John Wiley & Sons, 1988, pp. 667-708.
- [CRC] CRC-Handbook of Chemistry and Physics, 57. Ausgabe, S. E 218.
- [Dan90a] A. Dannemann, Diplomarbeit, Hamburg, 1990.
- [Dan90b] A. Dannemann, U. Holm, T. Marckmann, K. Wick, M. Rohde, High and Low Dose Rate Irradiations of Scintillators and Wave-Length Shifters, ECFA/LHC Workshop, Aachen, CERN 90-10, Vol. 111 (1990), pp.645-650.
- [Dav 70] C. David, D. Fuld, G. Geukens, Radiolysis of Polymethylmethacrylate in the Presence of Ethylmercaptan, Die Makromolekulare Chemie 139 (1970) 269-276 (Nr.3454).
- [Fag96] S. Faghihi, Dissertation, Hamburg, 1996 in Vorbereitung.
- [Gor79] W. Gordy, Techniques of Chemistry, Volume XV: Theory and Applications of Electron Spin Resonance, John Wiley & Sons, 1979.
- [Hag83] M. Hagiwara, T. Kagiya in Degradation and Stabilization of Polymers, ed. H. H. G. Jellinek, Elsevier, 1983, pp. 358-387.
- [Har69] L. A. Harrah, ESR of Radicals Produced in ⁶⁰Co Gamma-Irradiated Polystyrene, Mol. Crystals and Liquid Crystals, 9(1969) pp. 197-210, 1969.
- [Hol87] U. Holm, The Wave-Length Shifter for the FCAL Prototype, ZEUS-note 87-33 (1987).
- [Hol89a] U. Holm, K. Wick, Radiation Stability of Plastic Scintillators and Wave-Length Shifters, IEEE Trans. Nucl. Sc., Vol. 36, No. 1, pp.579-583, February 1989.
- [Hol89b] U. Holm, Radiation Stability of Plastic Scintillators and Wave-Length Shifters, ECFA Study Week on Instrumentation Technology for High Luminosity Hadron Colliders, Barcelona, Spain, 1989, CERN 89-10 (1989), pp.163-164.
- [Hol93] U. Holm, T. Neumann, V. Schlottmann, K. Wick, A. Dannemann, Influence of UV Absorbants on Radiation Stability of Wave Length Shifters, Radiat. Phys. Chem. Vol 41, No. 1/2, pp. 173-179, 1993.
- [Hor93] D. Horstmann, U. Holm, Fluorescence Quenching of Plastic Scintillators in Oxygen, Radiat. Phys. Chem., Vol. 41, No. 1/2, pp.395-400, 1993.
- [Kam89] H. Kammerlocher, Diplomarbeit, Hamburg, 1989.
- [Kat86] Y. Katsumura, Y. Tabata, T. Seguchi, N. Morishita, T. Kojima Fast Neutron Irradiation Effects—III. Sensitivity of Alanine Systems for Fast Neutron Having an Energy of ~ 1 MeV, Radiat. Phys. Chem., Vol. 28, No. 4, pp. 337-341, 1986.

- [Kei70] G. Keil, Design Principles of Fluorescence Radiation Converters, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research 89 (1970) 111-123, North Holland, Amsterdam.
- [Kla90] R. Klanner, Persönliche Mitteilungen, 1990.
- [Kmn83] T. Kamon, K. Kondo, A. Yamashita, T. Shimizu, L. Nodulman, A New Scintillator and Wavelength Shifter, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research 213 (1983) 261-269, North Holland, Amsterdam.
- [Koh68] F. Kohlrausch, Praktische Physik, Band 3 (Tafeln), Teubner (1968).
- [Kre92] B. Krebs, Dissertation, Hamburg, 1992.
- [Kru93] W. Krull, A. Reymann, Umstellung des FRG-1 auf Brennelemente mit niedriger Anreicherung, Atomwirtschaft Atomtechnik, Jahrgang 38, Nr. 1 Januar 1993
- [Kuh75] Herausgeber: R. Vieweg, F. Esser, Kunststoff-Handbuch Band IX (Polymethacrylate), Carl Hanser Verlag München 1975.
- [Leh90] E. M. Lehockey, I. Reid, I. Hill, Physical and Chemical Aspects of PMMA Vapour Development, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B46 (1990) 364-368, North Holland, Amsterdam.
- [Maj92] S. Majewski, C. Zorn in Instrumentation in High Energy Physics, ed. F. Sauli, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd. 1992
- [Mit83] I. Mita, K. Horie in Degradation and Stabilization of Polymers, ed. H. H. G. Jellinek, Elsevier, 1983, pp. 235-288.
- [Neu92] T. Neumann, Diplomarbeit, Hamburg, 1992.
- [Neu96] T. Neumann, Dissertation, Hamburg, 1996 in Vorbereitung.
- [Pau89a] D. Paul, Diplomarbeit, Hamburg, 1989.
- [Pau89b] D. Paul, P. Schröder, V. Stieber, K. Wick, Recovery and Dose Rate Dependence of Radiation Damage in Scintillators and Wave-Length Shifters, ECFA Study Week on Instrumentation Technology for High Luminosity Hadron Colliders, Barcelona, Spain, 1989, CERN 89-10 (1989), pp.159-161.
- [Paw92] PAW Physics Analysis Workstation, CERN Program Library entry Q121.
- [Pet88] W. Petzold, H. Krieger, Strahlenphysik, Dosimetrie und Strahlenschutz, Band 1 Grundlagen, Teubner, Stuttgart (1988).
- [Pra96] H. Prause, R. Mohrmann, U. Holm, ZEUS Radiation Background, ZEUS-note 1996 in Vorbereitung.
- [Ran77] B. Rånby, J.F. Rabek, ESR Spectroscopy in Polymer Research, Springer Verlag, 1977.
- [Rie88] G. Riedel, Diplomarbeit, Hamburg, 1988.

- [Reg81] D.F. Regulla, U. Defner, Dosimetry by ESR Spectroscopy of Alanine, Int. J. Appl. Radiat. Isot., Vol. 33, pp. 1101-1114, 1982.
- [Roh87] M. Rohde, A Test of the Scintillator Material SCSN-38 for Radiation Damage from Depleted Uranium, ZEUS-note 87-55 (1987).
- [Sac95] S. Schacht, Diplomarbeit, Hamburg, 1995.
- [Sch89] F. Coninckx, H. Schönbacher, A. Bartolotta, S. Onori, A. Rosati, Alanine Dosimetry as the Reference Dosimetric System in Accelerator Radiation Environments, Appl. Radiat. Isot., Vol. 40, No. 10-12, pp. 977-983, 1989.
- [Sir85] Y. Sirois, R. Wigmans, Effects of Long-Term Low-Level Exposure to Radiation as Observed in Acrylic Scintillator, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A240 (1985) 262-274, North Holland, Amsterdam.
- [Shu51] R. W. A. Shurcliff, Radiance Amplification by Multi-Stage Fluorescence System, J. Opt. Soc. Am. 41, 209 (1951).
- [Slo92] V. Schlottmann, Diplomarbeit, Hamburg, 1992.
- [Srö89] P. Schröder, Diplomarbeit, Hamburg, 1989.
- [Sti89] V. Stieber, Diplomarbeit, Hamburg, 1989.
- [Tod60] A. Todd, J. Polymer Sci. 42 (1960) 223.
- [Tri93] P. C. Trimmer, J. B. Schlenoff, K. B. Johnson, Spatially Resolved UV-VIS Characterization of Radiation-Induced Color Centers in Poly(styrene) and Poly(vinyltoluene), Radiat. Phys. Chem. Vol. 41, No. 1/2, pp. 57-64, 1993.
- [Val85] Fotovervielfacher, Elektronenvervielfacher -Einzelkanäle -Vielkanalplatten, Valvo Datenbuch, 1985.
- [Wic89] K. Wick, G. Riedel, D. Paul, V. Stieber, Radiation Damage of Wave Length Shifters and its Recovery in the Presence of Oxygen, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A277 251, North Holland, 1989.
- [Wic91] K. Wick, D. Paul, P. Schröder, V. Stieber, B. Bicken, Recovery and dose rate dependence of radiation damage in scintillators, wavelength shifters and light guides, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B61 (1991) 472-486, North Holland.
- [Wic96] K. Wick, Persönliche Mitteilungen, 1996.
- [Zeu93] ZEUS Collaboration, The ZEUS Detector Technical Proposal, DESY Hamburg (1986).

ZEUS Collaboration, The ZEUS Detector Status Report 1989, DESY - Hamburg (1989).

ZEUS Collaboration, The ZEUS Detector Status Report 1993, DESY - Hamburg (1993).

153

Danksagung

Hiermit möchte ich mich sehr herzlich bei all denen bedanken, die zum Entstehen dieser Arbeit beigetragen haben:

- Herrn Prof. Dr. K. Wick und Herrn Dr. U. Holm für die Aufgabenstellung, die intensive Betreuung und vielen interessanten Diskussionen und Anregungen;
- Herrn Dr. R. Klanner, der wesentlichen Anteil am Zustandekommen dieser Arbeit hat und dem ich viele interessante Anregungen verdanke;
- allen Mitgliedern der ZEUS-Kollaboration, in deren Rahmen diese Arbeit verwirklicht wurde;
- insbesondere allen ehemaligen und gegenwärtigen Migliedern der Arbeitsgruppe Teilchenphysik I des LInstituts für Experimentalphysik, in deren Umgebung ich in toller Atmosphäre eine verständnisvolle und diskussionsfreudige Zusammenarbeit erleben durfte; namentlich - soweit noch nicht genannt - sind dies: Dipl. Phys. B. Bicken, Dipl.-Phys. B. Böhnert, I. Bohnet, B. Bodmann. Dipl.-Phys. G. Buß Dipl.-Phys. W. Busjan, Dipl.-Phys. I. Eitner. Dipl.-Phys. F. Faghihi, N. Gendner, Dipl.-Phys. G. Gloth, W. Grell, A. Hacker, Dipl.-Phys. M. Herrmann, Dipl.-Phys. D. Hischke, Dipl.-Phys. D. Horstmann, S. Jacobs, Dipl.-Phys. H. Kammerlocher, Dr. B. Krebs, D. Kummerow. R. Ladwig, Dipl.-Phys. F. Meyer, A. Meyer-Larsen, E.-A. Möller, R. Mohrmann, Dipl.-Phys. T. Neumann, M. Nowoczyn, Dipl.-Ing. H. Prause, Dipl.-Phys. S. Sack, Dr. H. Salehi, Dipl.-Phys. S. Schacht, Dipl.-Phys. I. Schatz, Dipl.-Phys. V. Schlottmann, Dipl.-Phys. J. Thiesing, Dipl.-Phys. B. Wulkop, M. Zehden, T. Zoufal;
- Herrn B. Leicht[†], Herrn H. Wleklinski und allen Mitgliedern der Institutswerkstatt für die zuverlässige Anfertigung immer dringend benötigter Teile;
- Herrn U. Geyer (GKSS), Prof. Dr. W. Gunsser (Inst. f. Physikalische Chemie, Univ. Hamburg), Herrn W. Klein (HMI) und Herrn Dr. S. Kück (Inst. f. Laser-Physik, Univ. Hamburg) für die Unterstützung in experimentellen Belangen;
- und nicht zuletzt meinen Eltern f
 ür die Unterst
 ützung und Geduld und insbesondere meiner Freundin Maren f
 ür die fortw
 ährende Hilfe und moralische St
 ärkung.

